

# 2

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant : Satoshi Seo et al.  
Serial No. : New application  
Filed : December 21, 2001  
Title : LUMINESCENT DEVICE

Art Unit : Unknown  
Examiner : Unknown

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231



**TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENTS UNDER 35 USC §119**

Applicants hereby confirm their claim of priority under 35 USC §119 from the following applications:

Japan Application No. 2000-400953 filed December 28, 2000

Japan Application No. 2001-020817 filed January 29, 2001

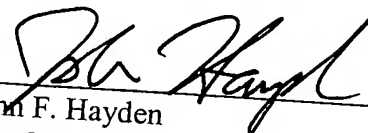
Japan Application No. 2001-032406 filed February 8, 2001

A certified copy of each application from which priority is claimed is submitted herewith.

Please apply any charges or credits to Deposit Account No. 06-1050.

Respectfully submitted,

Date: December 21, 2001

  
John F. Hayden  
Reg. No. 37,640

Fish & Richardson P.C.  
601 Thirteenth Street, NW  
Washington, DC 20005  
Telephone: (202) 783-5070  
Facsimile: (202) 783-2331

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年12月28日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-400953

出 願 人

Applicant(s):

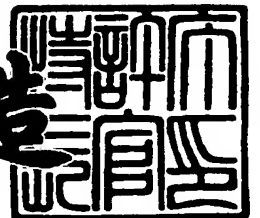
株式会社半導体エネルギー研究所



2001年10月19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3091655

【書類名】 特許願

【整理番号】 P005381

【提出日】 平成12年12月28日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 瀬尾 哲史

【特許出願人】

【識別番号】 000153878

【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002543

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた正孔輸送層と、を含む有機発光素子を有する発光装置において、前記正孔輸送層は第一の化合物および第二の化合物を含む層であり、前記第一の化合物は前記第二の化合物よりもイオン化ポテンシャルが小さく、かつ、前記第二の化合物は前記第一の化合物よりも正孔移動度が大きいことを特徴とする発光装置。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の発光装置において、前記正孔輸送層は、前記陽極から前記陰極への方向に対して、前記第一の化合物の濃度が減少し前記第二の化合物の濃度が増加する濃度勾配が形成されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 3】

請求項 1 または請求項 2 に記載の発光装置において、前記第一の化合物がフタロシアニン化合物であることを特徴とする発光装置。

【請求項 4】

請求項 1 または請求項 2 に記載の発光装置において、前記第二の化合物が芳香族アミン化合物であることを特徴とする発光装置。

【請求項 5】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた電子輸送層と、を含む有機発光素子を有する発光装置において、前記電子輸送層は第一の化合物および第二の化合物を含む層であり、前記第一の化合物は前記第二の化合物よりも電子親和力が大きく、かつ、前記第二の化合物は前記第一の化合物よりも電子移動度が大きいことを特徴とする発光装置。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の発光装置において、前記電子輸送層は、前記陽極から前記陰極への方向に対して、前記第一の化合物の濃度が増加し前記第二の化合物の濃度が減少する濃度勾配が形成されていることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 7】

請求項 5 または請求項 6 に記載の発光装置において、前記第一の化合物が、アルカリ金属錯体、またはキノリン骨格を含む金属錯体、またはベンゾキノリン骨格を含む金属錯体、またはオキサジアゾール誘導体、またはトリアゾール誘導体、であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 8】

請求項 5 または請求項 6 に記載の発光装置において、前記第二の化合物が、キノリン骨格を含む金属錯体、またはベンゾキノリン骨格を含む金属錯体、またはオキサジアゾール誘導体、またはトリアゾール誘導体、またはフェナントロリン誘導体、であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 9】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた発光層と、を含む有機発光素子を有する発光装置において、前記発光層は第一の化合物および第二の化合物を含む層であり、前記第一の化合物は前記第二の化合物よりも正孔移動度が大きく、かつ、前記第二の化合物は前記第一の化合物よりも電子移動度が大きいことを特徴とする発光装置。

## 【請求項 10】

請求項 9 に記載の発光装置において、前記発光層は、前記陽極から前記陰極への方角に対して、前記第一の化合物の濃度が減少し前記第二の化合物の濃度が増加する濃度勾配が形成されていることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 11】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた発光層と、を含む有機発光素子を有する発光装置において、前記発光層は第一の化合物、第二の化合物、および第三の化合物を含む層であり、前記第一の化合物は前記第二の化合物よりも正孔移動度が大きく、かつ、前記第二の化合物は前記第一の化合物よりも電子移動度が大きく、かつ、前記第三の化合物における最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差は、前記第一の化合物および前記第二の化合物の双方における最高被占分子軌道と最低空軌道とのエネルギー差よりも小さい発光材料であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 2】

請求項 1 1 に記載の発光装置において、前記発光層は、前記陽極から前記陰極への方向に対して、前記第一の化合物の濃度が減少し前記第二の化合物の濃度が増加する濃度勾配が形成されていることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 3】

請求項 9 乃至請求項 1 2 に記載の発光装置において、前記第一の化合物が芳香族アミン化合物であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 4】

請求項 9 乃至請求項 1 2 に記載の発光装置において、前記第二の化合物が、キノリン骨格を含む金属錯体、またはベンゾキノリン骨格を含む金属錯体、またはオキサジアゾール誘導体、またはトリアゾール誘導体、またはフェナントロリン誘導体、であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 5】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた発光層と、前記発光層に接して設けられたブロッキング層と、を含む有機発光素子を用いた発光装置において、前記ブロッキング層は、前記発光層に含まれる材料とブロッキング材料とを含み、前記ブロッキング材料における最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差は、前記発光層に含まれる材料における最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差よりも大きいことを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 6】

請求項 1 5 に記載の発光装置において、前記ブロッキング層は、前記陽極から前記陰極への方向に対して、前記発光層に含まれる材料の濃度が減少し前記ブロッキング材料の濃度が増加する濃度勾配が形成されていることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 7】

請求項 1 5 または請求項 1 6 に記載の発光装置において、前記ブロッキング材料が、オキサジアゾール誘導体、またはトリアゾール誘導体、またはフェナントロリン誘導体、であることを特徴とする発光装置。

## 【請求項 1 8】

請求項 1 乃至請求項 1 7 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記有機発光素子は、三重項励起状態からの発光を呈することを特徴とする発光装置。

【請求項 1 9】

請求項 1 乃至請求項 1 8 のいずれか一項に記載の発光装置を用いたことを特徴とする電気器具。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する分野】

本発明は、陽極と、陰極と、電界を加えることで発光が得られる有機化合物を含む膜（以下、「有機化合物層」と記す）と、を有する有機発光素子を用いた発光装置に関する。本発明では特に、従来よりも駆動電圧が低く、なおかつ素子の寿命が長い有機発光素子を用いた発光装置に関する。なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子として有機発光素子を用いた画像表示デバイスもしくは発光デバイスを指す。また、有機発光素子にコネクタ、例えば異方導電性フィルム（FPC: Flexible printed circuit）もしくはTAB（Tape Automated Bonding）テープもしくはTCP（Tape Carrier Package）が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または有機発光素子にCOG（Chip On Glass）方式によりIC（集積回路）が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

有機発光素子は、電界を加えることにより発光する素子である。その発光機構は、電極間に有機化合物層を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入された正孔が有機化合物層中の発光中心で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光すると言われている。

【0 0 0 3】

なお、有機化合物が形成する分子励起子の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であるが、本明細書中ではどちらの励起状態が発光に寄与す

る場合も含むこととする。

【0004】

このような有機発光素子において、通常、有機化合物層は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、有機発光素子は、有機化合物層そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。したがって、有機発光素子は極めて薄型軽量に作製できることが大きな利点である。

【0005】

また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の有機化合物層において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、有機化合物層のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以内のオーダーで発光に至る。したがって、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。

【0006】

さらに、有機発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず有機化合物層の厚みを $100\text{nm}$ 程度の均一な超薄膜とし、また、有機化合物層に対するキャリア注入障壁を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造（二層構造）を導入することによって、 $5.5\text{V}$ で $100\text{cd}/\text{m}^2$ の十分な輝度が達成された（文献1：C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Applied Physics Letters, vol. 51, No.12, 913-915 (1987)）。

【0007】

こういった薄型軽量・高速応答性・直流低電圧駆動などの特性から、有機発光素子は次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。また、自発光型であり視野角が広いことから、視認性も比較的良好であり、携帯機器の表示画面に用いる素子として有効と考えられている。

【0008】

ところで、文献1において示された有機発光素子の構成であるが、まず、キャリア注入障壁を小さくする方法として、仕事関数が低い上に比較的安定なMg:Ag



合金を陰極に用い、電子の注入性を高めている。このことにより、有機化合物層に大量のキャリアを注入することを可能としている。

## 【0009】

さらに有機化合物層として、ジアミン化合物からなる正孔輸送層とトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（以下、「Alq<sub>3</sub>」と記す）からなる電子輸送性発光層とを積層するという、シングルヘテロ構造を適用することにより、キャリアの再結合効率を飛躍的に向上させている。このことは、以下のように説明される。

## 【0010】

例えば、Alq<sub>3</sub>単層のみを有する有機発光素子の場合では、Alq<sub>3</sub>が電子輸送性であるため、陰極から注入された電子のほとんどは正孔と再結合せずに陽極に達してしまい、発光の効率は極めて悪い。すなわち、単層の有機発光素子を効率よく発光させる（あるいは低電圧で駆動する）ためには、電子および正孔の両方をバランスよく輸送できる材料（以下、「バイポーラー材料」と記す）を用いる必要があり、Alq<sub>3</sub>はその条件を満たしていない。

## 【0011】

しかし、文献1のようなシングルヘテロ構造を適用すれば、陰極から注入された電子は正孔輸送層と電子輸送性発光層との界面でブロックされ、電子輸送性発光層中へ閉じこめられる。したがって、キャリアの再結合が効率よく電子輸送性発光層で行われ、効率のよい発光に至るのである。

## 【0012】

このようなキャリアのブロッキング機能の概念を発展させると、キャリアの再結合領域を制御することも可能となる。その例として、正孔をブロックできる層（正孔ブロッキング層）を正孔輸送層と電子輸送層との間に挿入することにより、正孔を正孔輸送層内に閉じこめ、正孔輸送層の方を発光させることに成功した報告がある。（文献2：Yasunori KIJIMA, Nobutoshi ASAI and Shin-ichiro TAMURA, "A Blue Organic Light Emitting Diode", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 38, 5274-5277(1999)）。

## 【0013】

また、文献1における有機発光素子は、いわば正孔の輸送は正孔輸送層が行い、電子の輸送および発光は電子輸送性発光層が行うという、機能分離の発想であるとも言える。この機能分離の概念はさらに、正孔輸送層と電子輸送層の間に発光層を挟むというダブルヘテロ構造（三層構造）の構想へと発展した（文献3：Chihaya ADACHI, Shizuo TOKITO, Tetsuo TSUTSUI and Shogo SAITO, "Electroluminescence in Organic Films with Three-Layered Structure", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 27, No. 2, L269-L271(1988))。

## 【0014】

こういった機能分離の利点としては、機能分離することによって一種類の有機材料に様々な機能（発光性、キャリア輸送性、電極からのキャリア注入性など）を同時に持たせる必要がなくなり、分子設計等に幅広い自由度を持たせることができる点にある（例えば、無理にバイポーラー材料を探索する必要がなくなる）。つまり、発光特性のいい材料、キャリア輸送性が優れる材料などを、各々組み合わせることで、容易に高発光効率が達成できるということである。

## 【0015】

これらの利点から、文献1で述べられた積層構造の概念（キャリアブロッキング機能あるいは機能分離）自体は、現在に至るまで広く利用されている。

## 【0016】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、以上で述べたような積層構造は異種物質間の接合であるため、その界面には必ずエネルギー障壁が生じることになる。エネルギー障壁が存在すれば、その界面においてキャリアの移動は妨げられるため、以下に述べるような二つの問題点が提起される。

## 【0017】

まず一つは、駆動電圧のさらなる低減へ向けての障害になるという点である。実際、現在の有機発光素子において、駆動電圧に関しては共役ポリマーを用いた単層構造の素子の方が優れており、パワー効率（単位：[lm/W]）でのトップデータ（ただし、一重項励起状態からの発光を比較）を保持していると報告されている（文献4：筒井哲夫、「応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科

会誌」、Vol. 11、No. 1、P.8 (2000) )。

【0018】

なお、文献4で述べられている共役ポリマーはバイポーラー材料であり、キャリアの再結合効率に関しては積層構造と同等なレベルが達成できる。したがって、バイポーラー材料を用いるなどの方法で、積層構造を用いることなくキャリアの再結合効率さえ同等にできるのであれば、界面の少ない単層構造の方が実際は駆動電圧が低くなることを示している。

【0019】

例えば電極との界面においては、エネルギー障壁を緩和するような材料を挿入し、キャリアの注入性を高めて駆動電圧を低減する方法がある（文献5：Takeo Wakimoto, Yoshinori Fukuda, Kenichi Nagayama, Akira Yokoi, Hitoshi Nakada, and Masami Tsuchida, "Organic EL Cells Using Alkaline Metal Compounds as Electron Injection Materials", IEEE TRANSACTIONS ON ELECTRON DEVICES, VOL. 44, NO. 8, 1245-1248(1997)）。文献5では、電子注入層として $\text{Li}_2\text{O}$ を用いることにより、駆動電圧の低減に成功している。

【0020】

しかしながら、有機材料間（例えば正孔輸送層と発光層との間のことであり、以下、「有機界面」と記す）のキャリア移動性に関してはいまだ未解決の分野であり、単層構造の低駆動電圧に追いつくための重要なポイントであると考えられる。

【0021】

さらに、エネルギー障壁に起因するもう一つの問題点として、有機発光素子の素子寿命に対する影響が考えられる。すなわち、キャリアの移動が妨げられ、チャージが蓄積することによる輝度の低下である。

【0022】

この劣化機構に関してははっきりした理論は確立されていないが、陽極と正孔輸送層との間に正孔注入層を挿入し、さらにdc駆動ではなく矩形波のac駆動にすることによって、輝度の低下を抑えることができるという報告がある（文献6：S. A. VanSlyke, C. H. Chen, and C. W. Tang, "Organic electroluminescent

devices with improved stability”, Applied Physics Letters, Vol. 69, No. 15, 2160-2162(1996))。このことは、正孔注入層の挿入およびac駆動によって、チャージの蓄積を排除することにより、輝度の低下を抑えることができたという実験的な裏付けと言える。

## 【 0 0 2 3 】

以上のことから、積層構造は容易にキャリアの再結合効率を高めることができ、なおかつ機能分離の観点から材料の選択幅を広くできるというメリットを持つ一方で、有機界面を多数作り出すことによってキャリアの移動を妨げ、駆動電圧や輝度の低下に影響を及ぼしていると言える。

## 【 0 0 2 4 】

そこで本発明では、従来用いられている積層構造の利点（機能分離）を活かしつつ、なおかつ有機化合物層中に存在するエネルギー障壁を緩和することによってキャリアの移動性を高め、従来よりも駆動電圧が低い上に素子の寿命が長い有機発光素子を提供することを課題とする。

## 【 0 0 2 5 】

また、このような有機発光素子を用いることにより、従来よりも駆動電圧が低く、なおかつ寿命の長い発光装置を提供することを課題とする。さらに、前記発光装置を用いて電気器具を作製することにより、従来よりも低消費電力で、なおかつ長保ちする電気器具を提供することを課題とする。

## 【 0 0 2 6 】

## 【課題を解決するための手段】

積層構造におけるエネルギー障壁の緩和に関しては、文献5に見られるようなキャリア注入層の挿入という技術に顕著に見られる。正孔注入層を例として、エネルギーバンドダイアグラムを用いた説明を図1に示す。

## 【 0 0 2 7 】

図1(a)では陽極101と正孔輸送層102を直接接合しているが、この場合、陽極101と正孔輸送層102のエネルギー障壁104は大きい。しかしながら、陽極のイオン化ポテンシャルと正孔輸送層の最高被占分子軌道（以下、「HOMO」と記す）準位との中間に位置するHOMO準位を有する材料を、正孔注入層103として挿入するこ

とにより、エネルギー障壁を階段状に設計することができる（図 1 (b)）。

【0028】

図 1 (b)のような階段状のエネルギー障壁を設計することにより、電極からのキャリア注入性を高め、確かに駆動電圧をある程度までは下げることができる。しかしながら問題点は、層の数を増やすことによって、有機界面の数は逆に増加することである。このことが、文献 4 で示されているように、単層構造の方が駆動電圧・パワー効率のトップデータを保持している原因であると考えられる。

【0029】

逆に言えば、この点を克服することにより、積層構造のメリット（様々な材料を組み合わせることができ、複雑な分子設計が必要ない）を活かしつつ、なおかつ単層構造の駆動電圧・パワー効率に追いつくことができる。

【0030】

その根本的な構想としては、有機界面の数を増やすことなく、有機化合物層中のエネルギー障壁を緩和することができればよい。本発明者は、以下に示すような方法でこの構想を実現できる素子構造を考案した。

【0031】

まず、正孔に対するエネルギー障壁を緩和する手法であるが、HOMO準位の高い（イオン化ポテンシャルの小さい）正孔注入材料と、正孔移動度の高い正孔輸送材料とを混合した層（以下、「正孔輸送性混合層」と記す）を設ければよい。この手法によって、陽極側からの正孔の受け取りを正孔注入材料が、正孔の輸送を正孔輸送材料が、それぞれ正孔輸送性混合層内で役割を果たし、従来の正孔注入層と正孔輸送層という二層の機能を一層で実現できる。

【0032】

また、上で述べた正孔輸送性混合層に、濃度勾配を形成することが好ましい。すなわち、図 2 に示すように、陽極に近い側は正孔注入材料の割合が多く、陽極から離れるにしたがって正孔輸送材料の割合が多くなっていくものである。このような濃度勾配を形成することによって、陽極側からの正孔の受け取りから輸送までが、大きなエネルギー障壁を形成することなく潤滑に行われ、駆動電圧の低下および長寿命化に貢献する。

## 【 0 0 3 3 】

なお、図 2 における濃度勾配は、便宜上直線を用いて図示したが、必ずしも直線となる必要はなく、増加ないしは減少の勾配が形成されていればよいものとする。実際、制御する際には曲線となる場合が多いと考えられる。本明細書で述べる濃度勾配（図 2 ～図 4、図 8、および図 1 0）についても、同様とする。

## 【 0 0 3 4 】

次に、電子に対するエネルギー障壁を緩和する手法であるが、最低空分子軌道（以下、「LUMO」と記す）準位の低い（電子親和力の大きい）電子注入材料と、電子移動度の高い電子輸送材料とを混合した層（以下、「電子輸送性混合層」と記す）を設ければよい。この手法によって、陰極側からの電子の受け取りを電子注入材料が、電子の輸送を電子輸送材料が、それぞれ電子輸送性混合層内で役割を果たし、従来の電子注入層と電子輸送層という二層の機能を一層で実現できる。

## 【 0 0 3 5 】

また、上で述べた電子輸送性混合層に、濃度勾配を形成することが好ましい。すなわち、図 3 に示すように、陰極に近い側は電子注入材料の割合が多く、陰極から離れるにしたがって電子輸送材料の割合が多くなっていくものである。このような濃度勾配を形成することによって、陰極側からの電子の受け取りから輸送までが、大きなエネルギー障壁を形成することなく潤滑に行われ、駆動電圧の低下および長寿命化に貢献する。

## 【 0 0 3 6 】

さらに、発光層におけるエネルギー障壁を緩和する手法もある。すなわち、正孔移動度の高い正孔輸送材料と、電子移動度の高い電子輸送材料とを混合してバイポーラー性とした層（以下、「バイポーラー性混合層」と記す）を、発光層として設ければよい。この場合、発光層の両端の界面におけるキャリアブロッキング機能は小さくなるが、バイポーラー性であるためキャリアブロッキング機能は必要なく（単層構造と同様の構成になる）、キャリアの再結合効率は十分に高い効率が達成できる。

## 【 0 0 3 7 】

また、上で述べたバイポーラー性混合層に、濃度勾配を形成することが好ましい。すなわち、図4に示すように、陽極に近い側は正孔輸送材料の割合が多く、陰極に近づくにしたがって電子輸送材料の割合が多くなっていくものである。このような濃度勾配を形成することによって、正孔および電子の輸送から再結合に到るまでが、大きなエネルギー障壁を形成することなく潤滑に行われ、駆動電圧の低下および長寿命化に貢献する。

## 【 0 0 3 8 】

なお、バイポーラー性混合層は、励起エネルギーの低い材料の方が発光すると考えられる。本明細書中における励起エネルギーとは、HOMOとLUMOとのエネルギー差のことを指す。

## 【 0 0 3 9 】

さらに、上で述べたバイポーラー性混合層に、発光材料をドーブして発光させる手法もある。この場合ドーパントである発光材料は、バイポーラー性混合層に含まれる正孔輸送材料および電子輸送材料よりも、低い励起エネルギーを有する必要がある。特に、キャリアトラップ型のドーパント（例；ルブレン）を用いると、キャリアの再結合効率がさらに高まるため好ましい。

## 【 0 0 4 0 】

また、文献2では正孔ブロッキング層が示されたが、このような層は一般にブロッキング材料で構成される。ブロッキング材料とは、発光層の材料よりも大きな励起エネルギーを有し（すなわち、分子励起子の拡散を防ぐことができ）、さらにキャリアもブロックできる材料のことである。

## 【 0 0 4 1 】

本発明者は、ブロッキング材料と、発光層の材料（あるいは発光層のホスト材料）とを混合した層（以下、「ブロッキング性混合層」と記す）を形成する手法についても考案した。この場合、ブロッキング性混合層は発光層としても機能していることになり、層内部で効率よくキャリアおよび分子励起子をブロックできる発光層という見方もできる。

## 【 0 0 4 2 】

ブロッキング性混合層に関しては、特に濃度勾配を形成することが好ましい。

なぜならば、発光層から離れるに従い徐々にブロッキング材料の濃度を高くすることにより、ブロッキングしない方のキャリア（正孔ブロッキング材料であれば電子）の移動を潤滑にできるからである。

【 0 0 4 3 】

ところで近年、三重項励起状態から基底状態に戻る際に放出されるエネルギー（以下、「三重項励起エネルギー」と記す）を発光に変換できる有機発光素子が相次いで発表され、その発光効率の高さが注目されている（文献 7 : D. F. O'Brien, M. A. Baldo, M. E. Thompson and S. R. Forrest, "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices", Applied Physics Letters, vol. 74, No. 3, 442-444 (1999))（文献 8 : Tetsuo TSUTSUI, Moon-Jae YANG, Masayuki YAHIRO, Kenji NAKAMURA, Teruichi WATANABE, Taishi TSUJI, Yoshinori FUKUDA, Takeo WAKIMOTO and Satoshi MIYAGUCHI, "High Quantum Efficiency in Organic Light-Emitting Devices with Iridium-Complex as a Triplet Emissive Center", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 38, L1502-L1504 (1999))。

【 0 0 4 4 】

文献 7 では白金を中心金属とする金属錯体を、文献 8 ではイリジウムを中心金属とする金属錯体を用いている。これらの三重項励起エネルギーを発光に変換できる有機発光素子（以下、「三重項発光素子」と記す）は、従来よりも高輝度発光・高発光効率を達成することができる。

【 0 0 4 5 】

しかしながら、文献 8 の報告例によると、初期輝度を  $500\text{cd/m}^2$  に設定した場合の輝度の半減期は 170 時間程度であり、素子寿命に問題がある。そこで、本発明を三重項発光素子に適用することにより、三重項励起状態からの発光による高輝度発光・高発光効率に加え、素子の寿命も長いという非常に高機能な発光素子が可能となる。

【 0 0 4 6 】

したがって、以上に述べたように、キャリア輸送層や発光層を混合層とすることによって界面の数を減少させ（あるいはエネルギー障壁を緩和させ）、キャリ



アの移動を潤滑にするという本発明の概念を、三重項発光素子に適用したのも本発明に含めるものとする。

## 【 0 0 4 7 】

以上のような発明を実施することにより、従来よりも駆動電圧が低く、なおかつ寿命の長い発光装置を提供することができる。さらに、前記発光装置を用いて電気器具を作製することにより、従来よりも低消費電力で、なおかつ長保ちする電気器具を提供することができる。

## 【 0 0 4 8 】

## 【発明の実施の形態】

以下では、本発明を実施する際の形態について述べる。なお、有機発光素子は、発光を取り出すために少なくとも陽極または陰極の一方が透明であればよいが、本実施の形態では、基板上に透明な陽極を形成し、陽極から光を取り出す素子構造で記述する。実際は、陰極から光を取り出す構造や、基板とは逆側から光を取り出す構造も適用可能である。

## 【 0 0 4 9 】

まず、正孔輸送性混合層を形成した有機発光素子の実施の形態を、図 5 を用いて説明する。図 5 では、陽極 502 を有する基板 501 上に、正孔輸送性混合層 503、発光層 504、電子輸送層 505、陰極 506 を積層した構造を示した。なお、発光層 504 を挿入せず、正孔輸送性混合層 503 ないしは電子輸送層 505 に発光を担わせることも可能である。

## 【 0 0 5 0 】

正孔輸送性混合層 503 は、正孔注入材料および正孔輸送材料の両方が混合されて形成されている。正孔注入材料としては、銅フタロシアニン（以下、「CuPc」と記す）・無金属フタロシアニン（以下、「H<sub>2</sub>Pc」と記す）などのフタロシアニン化合物、4, 4', 4''-トリス（N, N-ジフェニル-アミノ）-トリフェニルアミン（以下、「TDATA」と記す）・4, 4', 4''-トリス〔N-（3-メチルフェニル）-N-フェニル-アミノ〕-トリフェニルアミン（以下、「MTDATA」と記す）などのスターバースト型芳香族アミン化合物、ポリエチレンジオキシチオフェン（以下、「PEDOT」と記す）・ポリアニリン（以下、「PAni」と記す）などを含

む導電性高分子化合物、あるいは酸化アルミニウム・ポリイミド（以下、「PI」と記す）などに代表される絶縁材料、などが考えられる。正孔輸送材料としては芳香族アミン化合物が最も一般的であり、上記TDATAやMTDATAなどの他、4, 4'-ビス [N- (3-メチルフェニル) -N-フェニル-アミノ] -ビフェニル（以下、「TPD」と記す）・4, 4'-ビス [N- (1-ナフチル) -N-フェニル-アミノ] -ビフェニル（以下、「 $\alpha$ -NPD」と記す）などが用いられる。

## 【 0 0 5 1 】

なお、正孔輸送性混合層503は、図2に示したように、正孔注入材料と正孔輸送材料からなる濃度勾配が形成されていてもよい。この場合、正孔注入材料として酸化アルミニウムのような絶縁性が高い材料を用いる時は、正孔注入材料の濃度勾配は急峻である（すぐに減衰する）ことが好ましい。

## 【 0 0 5 2 】

次に、電子輸送性混合層を形成した有機発光素子の実施の形態を、図6を用いて説明する。図6では、陽極602を有する基板601上に、正孔輸送層603、発光層604、電子輸送性混合層605、陰極606を積層した構造を示した。なお、発光層604を挿入せず、電子輸送性混合層605ないしは正孔輸送層603に発光を担わせることも可能である。

## 【 0 0 5 3 】

電子輸送性混合層605は、電子注入材料および電子輸送材料の両方が混合されて形成されている。電子注入材料としては、リチウムアセチルアセトネート（以下、「Li(acac)」と記す）・（8-キノリノラト）リチウム（以下、「Li<sub>q</sub>」と記す）などのアルカリ金属錯体、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（以下、「Al<sub>q</sub>」と記す）・ビス（10-ヒドロキシベンゾ [h] -キノリナト）ベリリウム（以下、「BeBq<sub>2</sub>」と記す）などのキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体、2-（4-ビフェニリル）-5-（4-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール（以下、「PBD」と記す）・1, 3-ビス [5-（p-tert-ブチルフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル] ベンゼン（以下、「OXD-7」と記す）などのオキサジアゾール誘導体、3-（4-tert-ブチルフェニル）-4-フェニル-5-（4-ビフェニリル）-1, 2, 4-トリアゾール

(以下、「TAZ」と記す)・3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニリル)-1,2,4-トリアゾール(以下、「p-EtTAZ」と記す)などのトリアゾール誘導体、フッ化リチウム・酸化リチウムなどの無機化合物、などが考えられる。電子輸送材料としては、上記Alq<sub>3</sub>・BeBq<sub>2</sub>などの金属錯体や、PBD・OXD-7などのオキサジアゾール誘導体や、TAZ・p-EtTAZなどのトリアゾール誘導体の他、主にブロッキング材料として使われるバソフェナントロリン(以下、「BPhen」と記す)・バソキュプロイン(以下、「BCP」と記す)などのフェナントロリン誘導体や、アルミニウムの混合配位子錯体なども電子輸送材料として用いることができる。

## 【 0 0 5 4 】

なお、電子輸送性混合層605は、図3に示したように、電子注入材料と電子輸送材料からなる濃度勾配が形成されていてもよい。この場合、電子注入材料としてフッ化リチウムのような絶縁性が高い材料を用いる時は、電子注入材料の濃度勾配は急峻である(すぐに減衰する)ことが好ましい。

## 【 0 0 5 5 】

次に、バイポーラー性混合層を形成した有機発光素子の実施の形態を、図7を用いて説明する。図7(a)では、陽極702を有する基板701上に、正孔注入層703、バイポーラー性混合層704、電子注入層705、陰極706を積層した構造を示した。

## 【 0 0 5 6 】

バイポーラー性混合層704は、正孔輸送材料および電子輸送材料の両方が混合されて形成されている。正孔輸送材料としては、TPD・ $\alpha$ -NPD・TDATA・MTDATAなどの芳香族アミン化合物が好ましい。電子輸送材料としては、Alq<sub>3</sub>・BeBq<sub>2</sub>などの金属錯体、PBD・OXD-7などのオキサジアゾール誘導体、TAZ・p-EtTAZなどのトリアゾール誘導体、BPhen・BCPなどのフェナントロリン誘導体が好ましい。

## 【 0 0 5 7 】

なお、バイポーラー性混合層704は、図4に示したように、正孔輸送材料と電子輸送材料とからなる濃度勾配が形成されていてもよい。

## 【 0 0 5 8 】

また、図7(b)に示すように、バイポーラー性混合層704に含まれる正孔輸送材

料を正孔輸送層707の構成材料として用い、バイポーラー性混合層704に含まれる電子輸送材料を電子輸送層708の構成材料として用いることによって、バイポーラー性混合層704と、正孔輸送層707および電子輸送層708とを、連続的に接合してもよい。この場合、2種類の化合物（正孔輸送材料および電子輸送材料）で、正孔輸送層、発光層、電子輸送層の3層の役割を果たすことができる利点がある。なお、図7(b)では示していないが、陽極702と正孔輸送層707との間に正孔注入層を、陰極706と電子輸送層708との間に電子注入層を挿入してもよい。

## 【0059】

さらに、図7に示したバイポーラー性混合層704に、発光材料をドーブして発光させる手法もある。この場合ドーパントである発光材料は、バイポーラー性混合層704に含まれる正孔輸送材料および電子輸送材料よりも、低い励起エネルギーを有する必要がある。ドーパントとしては、ペリレン、キナクリドン、ルブレンなど、各種の色素が可能である。

## 【0060】

ところで、上で述べたようないくつかの実施の形態は、複合して用いることも可能である。すなわち、正孔輸送性混合層、電子輸送性混合層、バイポーラー性混合層を組み合わせて適用する手法である。その一例を図8に示す。

## 【0061】

図8に示す素子構造は、陽極802を有する基板801上に、正孔注入材料811および正孔輸送材料812からなる正孔輸送性混合層803、正孔輸送材料812および電子輸送材料813からなるバイポーラー性混合層804、電子輸送材料813および電子注入材料814からなる電子輸送性混合層805、そして陰極806を積層したものである。

## 【0062】

なお、本実施の形態においては、バイポーラー性混合層804内部に、発光材料815を少量ドーブした発光領域807が設けてある。また、各層においては、グラフ810に示したような濃度勾配を形成した。なお、このような濃度勾配を形成した場合の、予想されるバンドダイアグラムの模式図を図19に示す。

## 【0063】

本素子構造によって、従来ならば正孔注入層・正孔輸送層・電子輸送層・電子注入層という四層構造（図 1 9 (a)）が、三層構造（図 1 9 (b)）に収まることになる。しかも、図 1 9 (b)に示されるとおり、各混合層内はなだらかなエネルギー障壁しかなく、また、各混合層間は正孔輸送材料812および電子輸送材料813によって連続的に接合されており、キャリアの移動に有利である。

## 【 0 0 6 4 】

次に、本発明を三重項発光素子に適用した場合の実施の形態を説明する。通常、三重項発光素子の基本構造は、文献 8 に示されるとおり図 9 のような素子構造である。すなわち、基板901、陽極902、正孔輸送層903、ホスト材料に三重項発光材料をドーブして形成される発光層904、ブロッキング層905、電子輸送層906、そして陰極907である。ブロッキング層905はブロッキング材料からなり、正孔をブロックして発光層904におけるキャリアの再結合効率を高めると同時に、発光層904において発生した分子励起子の拡散を防ぐ役割も果たす。また、電子輸送性の材料でもある。

## 【 0 0 6 5 】

図 9 の素子構造に対し、正孔注入層や電子注入層を設けることにより、さらに発光効率を高めることができる。しかしながら、ただでさえ図 9 に示すような 5 層構造である上に、さらに層を増やすことによって、界面の数はさらに増加してしまう。そこで、本発明を適用する。

## 【 0 0 6 6 】

すなわち、図 9 において、正孔輸送層903を正孔注入材料と正孔輸送材料とからなる正孔輸送性混合層とする、発光層904を正孔輸送材料と発光層のホスト材料とからなるバイポーラー性混合層とする、電子輸送層906を電子輸送材料と電子注入材料とからなる電子輸送性混合層とする、などの手法である。三重項発光材料は、発光層のホスト材料が存在する部分にドーブすればよい。また、図 2 ～ 図 4 に示したように、各混合層に濃度勾配を形成することも有効である。

## 【 0 0 6 7 】

なお、図 9 においては、ブロッキング層905は単独の層として用いているが、本発明を実施する場合、発光層のホスト材料と混合してもよい（すなわち、プロ

ッキング性混合層を形成してもよい)。ただし、分子励起子の拡散を防ぐ観点から、陰極側においてブロッキング材料が高濃度となるように、濃度勾配を形成することが好ましい。

#### 【 0 0 6 8 】

以上をふまえ、本発明を三重項発光素子に適用した実施の形態の一例を図 1 0 に示す。すなわち、陽極1002を有する基板1001上に、正孔注入材料1011および正孔輸送材料1012からなる正孔輸送性混合層1003、正孔輸送材料1012およびホスト材料1013からなるバイポーラー性混合層1004、発光層ホスト材料1013およびブロッキング材料1014からなるブロッキング性混合層1005、ブロッキング材料1014（この場合、電子輸送材料も兼ねている）および電子注入材料1015からなる電子輸送性混合層1006、そして陰極1007を積層したものである。各層には、グラフ1010に示すような濃度勾配を形成した。

#### 【 0 0 6 9 】

なお、本実施の形態は三重項発光素子であるため、三重項発光材料1016を少量ドーピングした発光領域1008が設けてある。発光領域1008は、図 1 0 で示されているようにホスト材料1013の濃度が高い領域に設置することが好ましい。また、グラフ1010に示したような濃度勾配を形成した場合の、予想されるバンドダイアグラムの模式図を図 2 0 に示す。

#### 【 0 0 7 0 】

本素子構造によって、従来ならば正孔注入層・正孔輸送層・発光層・ブロッキング層（電子輸送層を兼ねる）・電子注入層という五層構造（図 2 0 (a)）が、四層構造（図 2 0 (b)）に収まることになる。しかも、図 2 0 (b)に示されるとおり、各混合層内はなだらかなエネルギー障壁がなく、また、各混合層間は正孔輸送材料1012、ホスト材料1013、およびブロッキング材料1014（電子輸送材料を兼ねている）によって連続的に接合されており、キャリアの移動に有利である。

#### 【 0 0 7 1 】

最後に、濃度勾配の形成手法について言及しておく。ここでは、抵抗加熱による真空蒸着で成膜できる場合について述べる。濃度勾配の形成手法に関しては、材料の蒸発温度と蒸着レート（通常、単位はÅ/s）との相関がとれている場合

、温度制御により蒸着レートを制御することも可能である。しかしながら、特に通常粉末形状で用いる有機材料の熱伝導性は悪く、温度による制御はむらを生じやすい。したがって、濃度勾配を形成する2種類の材料をそれぞれ別の蒸着源に用意し、シャッターを利用した蒸着レート制御（膜厚は水晶振動子によってモニターする）で行うことが好ましい。その形態を図11に示す。

## 【0072】

図11では、図7(b)で示した素子構造を例に、濃度勾配の形成手法を説明する。したがって、図11中では図7(b)で用いた符号を引用する。まず、成膜室1110内に、陽極1102を有する基板1101を搬入し、固定台1111にて固定する（蒸着時には通常、基板は回転させる）。

## 【0073】

次に、正孔輸送材料1116を設置した試料室a1112を加熱し、シャッターa1114を開けることにより、正孔輸送材料1116からなる正孔輸送層707を成膜する。この時、電子輸送材料1117を設置した試料室b1113も同時に加熱しておくが、シャッターb1115は閉じておく。

## 【0074】

正孔輸送層707が所定の膜厚に達したあと、シャッターa1114を徐々に閉じると同時に、シャッターb1115を徐々に開いていく。この時の開閉速度により、バイポーラー性混合層704の濃度勾配を形成する。その開閉速度は、シャッターa1114が完全に閉じる頃に、バイポーラー性混合層704が所定の膜厚に達するように、かつ、電子輸送材料1117が所定の蒸着レート（電子輸送層708を蒸着する際のレート）に達するように、設定すればよい。その後は、シャッターb1115を開けたまま電子輸送層708を形成して、図7(b)の素子構造において濃度勾配を形成した素子が可能になる。

## 【0075】

なお、この方法は図7(b)以外の素子構造において、濃度勾配を形成する場合も全て適用可能である。また、バイポーラー性混合層に発光材料をドーピングするような場合は、図11の蒸着源をさらに一つ増やし、ドーピング時間帯のみシャッターを開ければよい。

【 0 0 7 6 】

【実施例】

【実施例 1】

本実施例では、発明の実施の形態において図 5 で示したような、正孔輸送性混合層を適用した素子を具体的に例示する。

【 0 0 7 7 】

まず、ガラス基板 501 上にインジウム錫酸化物（以下、「ITO」と記す）をスパッタリングによって 100nm 程度成膜し、陽極 502 とする。次に、正孔注入材料である CuPc と正孔輸送材料である  $\alpha$ -NPD を 1 : 1 の蒸着レート比で共蒸着することにより、正孔輸送性混合層 503 を形成する。膜厚は 50nm とする。

【 0 0 7 8 】

さらに発光層 504 として、Alq<sub>3</sub> にルブレンを 5wt% ドープした層を 10nm 積層する。最後に、電子輸送層 505 として Alq<sub>3</sub> を 40nm、陰極 506 として Al:Li 合金（Li は質量比で 0.5wt%）を 150nm 程度成膜することにより、ルブレンに由来する黄色発光の有機発光素子を作製できる。

【 0 0 7 9 】

【実施例 2】

本実施例では、発明の実施の形態において図 6 で示したような、電子輸送性混合層を適用した素子を具体的に例示する。

【 0 0 8 0 】

まず、ガラス基板 601 上に ITO をスパッタリングによって 100nm 程度成膜し、陽極 602 とする。次に、正孔輸送材料である  $\alpha$ -NPD を 50nm 成膜することにより、正孔輸送層 603 を形成する。

【 0 0 8 1 】

さらに、発光層 604 としてペリレンを 10nm 積層したあと、電子輸送材料である B-Phen と電子注入材料である Alq<sub>3</sub> を 1 : 1 の蒸着レート比で共蒸着することにより、電子輸送性混合層 605 を形成する。膜厚は 40nm とする。最後に、陰極 606 として Al:Li 合金（Li は重量比で 0.5wt%）を 150nm 程度成膜することにより、ペリレンに由来する青色発光の有機発光素子を作製できる。



【 0 0 8 2 】

## 〔実施例 3〕

本実施例では、発明の実施の形態において図 7 (b)で示したような、バイポーラー性混合層を適用した素子を具体的に例示する。なお、濃度勾配を形成するため、図 1 1 で示したような装置を用いて素子を作製する。本実施例の場合は、正孔輸送材料、電子輸送材料、および発光材料の 3 種類の蒸着源を必要とする。

【 0 0 8 3 】

まず、ガラス基板 701 上に IT0 をスパッタリングによって 100nm 程度成膜し、陽極 702 とする。次に、正孔輸送材料である  $\alpha$ -NPD を 40nm 成膜することにより、正孔輸送層 707 を形成する。

【 0 0 8 4 】

さらに、発明の実施の形態において説明したように、正孔輸送材料 ( $\alpha$ -NPD) の蒸着源のシャッターを徐々に閉じると同時に、電子輸送材料 (本実施例では  $\text{Alq}_3$  を用いる) の蒸着源のシャッターを徐々に開けていくことにより、 $\alpha$ -NPD と  $\text{Alq}_3$  とからなる濃度勾配を有するバイポーラー性混合層 704 を 20nm 成膜する。この時、バイポーラー性混合層 704 の厚み 20nm の中間に位置する 10nm の領域に、発光材料としてルブレンを 5wt% の割合でドーピングする。

【 0 0 8 5 】

バイポーラー性混合層が 20nm に達したあと、電子輸送材料 ( $\text{Alq}_3$ ) の蒸着源のシャッターのみを開けた状態で、 $\text{Alq}_3$  で構成される電子輸送層 708 を形成する。最後に、陰極 706 として Al:Li 合金 (Li は重量比で 0.5wt%) を 150nm 程度成膜することにより、ルブレンに由来する黄色発光の有機発光素子を作製できる。

【 0 0 8 6 】

## 〔実施例 4〕

本実施例では、発明の実施の形態において図 8 で示したような、正孔輸送性混合層・バイポーラー性混合層・電子輸送性混合層を複合して適用した素子を具体的に例示する。なお、本実施例では濃度勾配 (図 8 中のグラフ 810) を形成するため、実施例 3 と同様、図 1 1 にて示したようなシャッター付きの蒸着源を用いる。

## 【 0 0 8 7 】

まず、ガラス基板801上にITOをスパッタリングによって100nm程度成膜し、陽極802とする。次に、正孔注入材料811であるCuPcと正孔輸送材料812である $\alpha$ -NPDとからなる正孔輸送性混合層803を、40nm成膜する。この時、シャッターの開閉によりグラフ810のような濃度勾配を形成する。

## 【 0 0 8 8 】

今度は、 $\alpha$ -NPDの蒸着源のシャッターを徐々に閉じると同時に、電子輸送材料813であるAlq<sub>3</sub>の蒸着源のシャッターを徐々に開けていくことにより、濃度勾配を有するバイポーラー性混合層804を20nm成膜する。この時、バイポーラー性混合層804の厚み20nmの中間に位置する10nmの領域807は、発光材料815である4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(以下、「DCM」と記す)を1wt%の割合でドーブする。

## 【 0 0 8 9 】

バイポーラー性混合層804が20nmに達したあと、Alq<sub>3</sub>のシャッターのみを開けた状態でAlq<sub>3</sub>を35nm蒸着する。最後の5nmの領域において、Alq<sub>3</sub>の蒸着源のシャッターを徐々に閉じると同時に、電子注入材料813であるLi(acac)の蒸着源のシャッターを徐々に開けていくことにより、合計40nmの電子輸送性混合層805を形成する。すなわち、Li(acac)の濃度勾配を急峻に設定することになる(グラフ810では電子注入材料814の傾きが一定であるような図示であるが、本実施例では最後の方だけ急激に立ち上がることになる)。

## 【 0 0 9 0 】

最後に、陰極806としてAlを150nm程度成膜することにより、DCMに由来する赤色発光の有機発光素子を作製できる。

## 【 0 0 9 1 】

## 【実施例5】

本実施例では、発明の実施の形態において図9で示したような、三重項発光素子に本発明を適用した素子を具体的に例示する。その素子構造を図10に示す。なお、本実施例では濃度勾配(図10中のグラフ1010)を形成するため、実施例3と同様、図11にて示したようなシャッター付きの蒸着源を用いる。

## 【0092】

まず、ガラス基板1001上にITOをスパッタリングによって100nm程度成膜し、陽極1002とする。次に、正孔注入材料1011であるCuPcと正孔輸送材料1012である $\alpha$ -NPDとからなる正孔輸送性混合層1003を、40nm成膜する。この時、シャッターの開閉によりグラフ1010のような濃度勾配を形成する。

## 【0093】

引き続き、 $\alpha$ -NPDの蒸着レートを徐々に減少しつつ、三重項発光材料のホスト材料1013である4,4'-N,N'-ジカルバゾルービフェニル（以下、「CBP」と記す）の蒸着レートを上げていくことにより、 $\alpha$ -NPDとCBPとからなる濃度勾配を有するバイポーラー性混合層1004を20nm形成する。今度は、CBPの蒸着レートを減少させつつ、ブロッキング材料1014であるBCPの蒸着レートを上げていくことにより、CBPとBCPとからなる濃度勾配を有するブロッキング性混合層1005を形成する。膜厚は10nmとする。

## 【0094】

本実施例は三重項発光素子であるため、バイポーラー性混合層1004およびブロッキング性混合層1005を形成する間に、三重項発光材料1016であるトリス（2-フェニルピリジン）イリジウム（以下、「Ir(ppy)<sub>3</sub>」と記す）をドーピングする。そのドーピング領域1008は、ホスト材料であるCBPの濃度が高い領域、すなわち、バイポーラー性混合層1004とブロッキング性混合層1005との境界付近が最も適している。本実施例では、前記境界の $\pm 5$ nm、合計10nmをドーピング領域1008とし、6wt%ドーピングする。

## 【0095】

さらに、電子輸送性混合層1006は、電子輸送能力の高いBCPおよびAlq<sub>3</sub>から構成する。BCPの濃度は陽極から離れるに従い小さくなり、Alq<sub>3</sub>の濃度は逆に大きくなるように濃度勾配を形成する。すなわちこの場合、BCPはブロッキング材料かつ電子輸送材料、Alq<sub>3</sub>は電子注入材料1015の役割を果たしている。電子輸送性混合層1006の膜厚は40nmとする。

## 【0096】

最後に、陰極1007としてAl:Li合金（Liは重量比で0.5wt%）を150nm程度成膜す

ることにより、 $\text{Ir(ppy)}_3$ に由来する緑色の三重項発光を呈する有機発光素子を作製できる。

【0097】

【実施例6】

本実施例では、本発明で開示した有機発光素子を含む発光装置について説明する。図12は本発明の有機発光素子を用いたアクティブマトリクス型発光装置の断面図である。なお、能動素子としてここでは薄膜トランジスタ（以下、「TFT」と記す）を用いているが、MOSトランジスタを用いてもよい。

【0098】

また、TFTとしてトップゲート型TFT（具体的にはプレーナ型TFT）を例示するが、ボトムゲート型TFT（典型的には逆スタガ型TFT）を用いることもできる。

【0099】

図12において、1201は基板であり、ここでは可視光を透過する基板を用いる。具体的には、ガラス基板、石英基板、結晶化ガラス基板もしくはプラスチック基板（プラスチックフィルムを含む）を用いればよい。なお、基板1201とは、表面に設けた絶縁膜も含めるものとする。

【0100】

基板1201の上には画素部1211および駆動回路1212が設けられている。まず、画素部1211について説明する。

【0101】

画素部1211は画像表示を行う領域である。基板上には複数の画素が存在し、各画素には有機発光素子に流れる電流を制御するためのTFT（以下、「電流制御TFT」と記す）1202、画素電極（陽極）1203、有機化合物層1204および陰極1205が設けられている。なお、図12では電流制御TFTしか図示していないが、電流制御TFTのゲートに加わる電圧を制御するためのTFT（以下、「スイッチングTFT」と記す）を設けている。

【0102】

電流制御TFT1202は、ここではpチャネル型TFTを用いることが好ましい。nチャネル型TFTとすることも可能であるが、図12のように有機発光素子の陽極に電

流制御TFTを接続する場合は、pチャネル型TFTの方が消費電力を押さえることができる。ただし、スイッチングTFTはnチャネル型TFTでもpチャネル型TFTでもよい。

#### 【0103】

また、電流制御TFT1202のドレインには画素電極1203が電氣的に接続されている。本実施例では、画素電極1203の材料として仕事関数が4.5～5.5eVの導電性材料を用いるため、画素電極1203は有機発光素子の陽極として機能する。画素電極1203として代表的には、酸化インジウム、酸化錫、酸化亜鉛もしくはこれらの化合物（ITOなど）を用いればよい。画素電極1203の上には有機化合物層1204が設けられている。

#### 【0104】

さらに、有機化合物層1204の上には陰極1205が設けられている。陰極1205の材料としては、仕事関数が2.5～3.5eVの導電性材料を用いることが望ましい。陰極1205として代表的には、アルカリ金属元素もしくはアルカリ度類金属元素を含む導電膜、アルミニウムを含む導電膜、あるいはその導電膜にアルミニウムや銀などを積層したもの、を用いればよい。

#### 【0105】

また、画素電極1203、有機化合物層1204、および陰極1205からなる層は、保護膜1206で覆われている。保護膜1206は、有機発光素子を酸素および水から保護するために設けられている。保護膜1206の材料としては、窒化珪素、窒化酸化珪素、酸化アルミニウム、酸化タンタル、もしくは炭素（具体的にはダイヤモンドライクカーボン）を用いる。

#### 【0106】

次に、駆動回路1212について説明する。駆動回路1212は画素部1211に伝送される信号（ゲート信号およびデータ信号）のタイミングを制御する領域であり、シフトレジスタ、バッファ、ラッチ、アナログスイッチ（トランスファゲート）もしくはレベルシフタが設けられている。図12では、これらの回路の基本単位としてnチャネル型TFT1207およびpチャネル型TFT1208からなるCMOS回路を示している。

## 【0107】

なお、シフトレジスタ、バッファ、ラッチ、アナログスイッチ（トランスファゲート）もしくはレベルシフタの回路構成は、公知のものでよい。また図12では、同一の基板上に画素部1211および駆動回路1212を設けているが、駆動回路1212を設けずにICやLSIを電氣的に接続することもできる。

## 【0108】

また、図12では電流制御TFT1202に画素電極（陽極）1203が電氣的に接続されているが、陰極が電流制御TFTに接続された構造をとることもできる。その場合、画素電極を陰極1205と同様の材料で形成し、陰極を画素電極（陽極）1203と同様の材料で形成すればよい。その場合、電流制御TFTはnチャネル型TFTとすることが好ましい。

## 【0109】

ここで、図12に示したアクティブマトリクス型発光装置の外観を図13に示す。なお、図13(a)には上面図を示し、図13(b)には図13(a)をP-P'で切断した時の断面図を示す。また、図12の符号を引用する。

## 【0110】

図13(a)において、1301は画素部、1302はゲート信号側駆動回路、1303はデータ信号側駆動回路である。また、ゲート信号側駆動回路1302およびデータ信号側駆動回路1303に伝送される信号は、入力配線1304を介してTAB (Tape Automated Bonding) テープ1305から入力される。なお、図示しないが、TABテープ1305の代わりに、TABテープにIC（集積回路）を設けたTCP (Tape Carrier Package) を接続してもよい。

## 【0111】

このとき、1306は図12に示した有機発光素子の上方に設けられるカバー材であり、樹脂からなるシール材1307により接着されている。カバー材1306は酸素および水を透過しない材質であれば、いかなるものを用いてもよい。本実施例では、カバー材1306は図13(b)に示すように、プラスチック材1306aと、前記プラスチック材1306aの表面および裏面に設けられた炭素膜（具体的にはダイヤモンドライクカーボン膜）1306b、1306cからなる。

## 【 0 1 1 2 】

さらに、図 1 3 (b)に示すように、シール材1307は樹脂からなる封止材1308で覆われ、有機発光素子を完全に密閉空間1309に封入するようになっている。密閉空間1309は不活性ガス（代表的には窒素ガスや希ガス）、樹脂または不活性液体（例えばパーフルオロアルカンに代表される液状のフッ素化炭素）を充填しておけばよい。さらに、吸湿剤や脱酸素剤を設けることも有効である。

## 【 0 1 1 3 】

また、本実施例に示した発光装置の表示面（画像を観測する面）に偏光板をもうけてもよい。この偏光板は、外部から入射した光の反射を押さえ、観測者が表示面に映り込むことを防ぐ効果がある。一般的には、円偏光板が用いられている。ただし、有機化合物層から発した光が偏光板により反射されて内部に戻ること防ぐため、屈折率を調節して内部反射の少ない構造とすることが好ましい。

## 【 0 1 1 4 】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

## 【実施例 7】

## 【 0 1 1 5 】

本実施例では、本発明で開示した有機発光素子を含む発光装置の例として、パッシブマトリクス型発光装置を例示する。図 1 4 (a)にはその上面図を示し、図 1 4 (b)には図 1 4 (a)をP-P'で切断した時の断面図を示す。

## 【 0 1 1 6 】

図 1 4 (a)において、1401は基板であり、ここではプラスチック材を用いる。プラスチック材としては、ポリイミド、ポリアミド、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、PES（ポリエチレンサルファイド）、PC（ポリカーボネート）、PET（ポリエチレンテレフタレート）もしくはPEN（ポリエチレンナフタレート）を板状、もしくはフィルム上にしたものが使用できる。

## 【 0 1 1 7 】

1402は酸化導電膜からなる走査線（陽極）であり、本実施例では酸化亜鉛に酸化ガリウムを添加した酸化物導電膜を用いる。また、1403は金属膜からなるデー

タ線（陰極）であり、本実施例ではビスマス膜を用いる。また、1404はアクリル樹脂からなるバンクであり、データ線1403を分断するための隔壁として機能する。走査線1402とデータ線1403は両方とも、ストライプ状に複数形成されており、互いに直交するように設けられている。なお、図14(a)では図示していないが、走査線1402とデータ線1403の間には有機化合物層が挟まれており、交差部1405が画素となる。

## 【0118】

そして、走査線1402およびデータ線1403はTABテープ1407を介して外部の駆動回路に接続される。なお、1408は走査線1402が集合してなる配線群を表しており、1409はデータ線1403に接続された接続配線1406の集合からなる配線群を表す。また、図示していないが、TABテープ1407の代わりに、TABテープにICを設けたTCPを接続してもよい。

## 【0119】

また、図14(b)において、1410はシール材、1411はシール材1410によりプラスチック材1401に貼り合わされたカバー材である。シール材1410としては光硬化樹脂を用いていけばよく、脱ガスが少なく、吸湿性の低い材料が望ましい。カバー材としては基板1401と同一の材料が好ましく、ガラス（石英ガラスを含む）もしくはプラスチックを用いることができる。ここではプラスチック材を用いる。

## 【0120】

次に、画素領域の構造の拡大図を図14(c)に示す。1413は有機化合物層である。なお、図14(c)に示すように、バンク1404は下層の幅が上層の幅よりも狭い形状になっており、データ線1403を物理的に分断できる。また、シール材1410で囲まれた画素部1414は、樹脂からなる封止材1415により外気から遮断され、有機化合物層の劣化を防ぐ構造となっている。

## 【0121】

以上のような構成からなる本発明の発光装置は、画素部1414が走査線1402、データ線1403、バンク1404および有機化合物層1413で形成されるため、非常に簡単なプロセスで作製することができる。

## 【0122】



また、本実施例に示した発光装置の表示面（画像を観測する面）に偏光板をもうけてもよい。この偏光板は、外部から入射した光の反射を押さえ、観測者が表示面に映り込むことを防ぐ効果がある。一般的には、円偏光板が用いられている。ただし、有機化合物層から発した光が偏光板により反射されて内部に戻ること防ぐため、屈折率を調節して内部反射の少ない構造とすることが好ましい。

## 【 0 1 2 3 】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

## 【 0 1 2 4 】

## 【実施例 8】

本実施例では、実施例 7 で示した発光装置にプリント配線板を設けてモジュール化した例を示す。

## 【 0 1 2 5 】

図 1 5 (a) に示すモジュールは、基板 1501（ここでは、画素部 1502、配線 1503a、1503b を含む）に TAB テープ 1504 が取り付けられ、前記 TAB テープ 1504 を介してプリント配線板 1505 が取り付けられている。

## 【 0 1 2 6 】

ここで、プリント配線板 1505 の機能ブロック図を図 1 5 (b) に示す。プリント配線板 1505 の内部には少なくとも I/O ポート（入力もしくは出力部） 1506、1509、データ信号側駆動回路 1507 およびゲート信号側回路 1508 として機能する IC が設けられている。

## 【 0 1 2 7 】

このように、基板面に画素部が形成された基板に TAB テープが取り付けられ、その TAB テープを介して駆動回路としての機能を有するプリント配線版が取り付けられた構成のモジュールを、本明細書では特に駆動回路外付け型モジュールと呼ぶことにする。

## 【 0 1 2 8 】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0129】

## [実施例9]

本実施例では、実施例6もしくは実施例7に示した発光装置にプリント配線板を設けてモジュール化した例を示す。

【0130】

図16(a)に示すモジュールは、基板1601（ここでは、画素部1602、データ信号側駆動回路1603、ゲート信号側駆動回路1604、配線1603a、1604aを含む）にTABテープ1605が取り付けられ、そのTABテープ1605を介してプリント配線板1606が取り付けられている。プリント配線板1606の機能ブロック図を図16(b)に示す。

【0131】

図16(b)に示すように、プリント配線板1606の内部には少なくともI/Oポート1607、1610、コントロール部1608として機能するICが設けられている。なお、ここではメモリ部1609を設けてあるが、必ずしも必要ではない。またコントロール部1608は、駆動回路の制御、映像データの補正などをコントロールするための機能を有した部位である。

【0132】

このように、有機発光素子の形成された基板にコントローラーとしての機能を有するプリント配線板が取り付けられた構成のモジュールを、本明細書では特にコントローラー外付け型モジュールと呼ぶことにする。

【0133】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0134】

## [実施例10]

上記実施例で述べた本発明の発光装置は、低消費電力で寿命が長いという利点を有する。したがって、前記発光装置が表示部等として含まれる電気器具は、従来よりも低い消費電力で動作可能であり、なおかつ長保ちする電気器具となる。特に電源としてバッテリーを使用する携帯機器のような電気器具に関しては、低

消費電力化が便利さに直結する（電池切れが起こりにくい）ため、極めて有用である。

## 【 0 1 3 5 】

また、前記発光装置は、自発光型であることから液晶表示装置のようなバックライトは必要なく、有機化合物層の厚みも  $1\ \mu\text{m}$  に満たないため、薄型軽量化が可能である。したがって、前記発光装置が表示部等として含まれる電気器具は、従来よりも薄型軽量の電気器具となる。このことも、特に携帯機器のような電気器具に関して、便利さ（持ち運びの際の軽さやコンパクトさ）に直結するため、極めて有用である。さらに、電気器具全般においても、薄型である（かさばらない）ことは運送面（大量輸送が可能）、設置面（部屋などのスペース確保）からみても有用であることは疑いない。

## 【 0 1 3 6 】

なお、前記発光装置は自発光型であるために、液晶表示装置に比べて明るい場所での視認性に優れ、しかも視野角が広いという特徴を持つ。したがって、前記発光装置を表示部として有する電気器具は、表示の見やすさの点でも大きなメリットがある。

## 【 0 1 3 7 】

すなわち、本発明の発光装置を用いた電気器具は、薄型軽量・高視認性といった従来の有機発光素子の長所に加え、低消費電力・長寿命という特長も保有しており、極めて有用である。

## 【 0 1 3 8 】

本実施例では、本発明の発光装置を表示部として含む電気器具を例示する。その具体例を図 1 7 および図 1 8 に示す。なお、本実施例の電気器具に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した金属錯体のいずれを用いても良い。また、本実施例の電気器具に含まれる発光装置の形態は、図 1 2 ～図 1 6 のいずれの形態を用いても良い。

## 【 0 1 3 9 】

図 1 7 (a) は有機発光素子を用いたディスプレイであり、筐体 1701a、支持台 1702a、表示部 1703a を含む。本発明の発光装置を表示部 1703a として用いたディス

プレイを作製することにより、薄く軽量で、長保ちするディスプレイを実現できる。よって、輸送が簡便になり、設置の際の省スペースが可能となる上に、寿命も長い。

## 【 0 1 4 0 】

図 1 7 (b) はビデオカメラであり、本体 1701b、表示部 1702b、音声入力部 1703b、操作スイッチ 1704b、バッテリー 1705b、受像部 1706b を含む。本発明の発光装置を表示部 1702b として用いたビデオカメラを作製することにより、消費電力が少なく、軽量のビデオカメラを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。

## 【 0 1 4 1 】

図 1 7 (c) はデジタルカメラであり、本体 1701c、表示部 1702c、接眼部 1703c、操作スイッチ 1704c を含む。本発明の発光装置を表示部 1702c として用いたデジタルカメラを作製することにより、消費電力が少なく、軽量のデジタルカメラを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。

## 【 0 1 4 2 】

図 1 7 (d) は記録媒体を備えた画像再生装置であり、本体 1701d、記録媒体 (CD、LD、または DVD など) 1702d、操作スイッチ 1703d、表示部 (A) 1704d、表示部 (B) 1705d を含む。表示部 (A) 1704d は主として画像情報を表示し、表示部 (B) 1705d は主として文字情報を表示する。本発明の発光装置をこれら表示部 (A) 1704d や表示部 (B) 1705d として用いた前記画像再生装置を作製することにより、消費電力が少なく軽量な上に、長保ちする前記画像再生装置を実現できる。なお、この記録媒体を備えた画像再生装置には、CD 再生装置、ゲーム機器なども含む。

## 【 0 1 4 3 】

図 1 7 (e) は携帯型 (モバイル) コンピュータであり、本体 1701e、表示部 1702e、受像部 1703e、操作スイッチ 1704e、メモリスロット 1705e を含む。本発明の発光装置を表示部 1702e として用いた携帯型コンピュータを作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量の携帯型コンピュータを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。なお、この携帯型コンピュータはフラッシュメモリや不揮発性メモリを集積化した記録媒体に情報を記録したり

、それを再生したりすることができる。

【0144】

図17(f)はパーソナルコンピュータであり、本体1701f、筐体1702f、表示部1703f、キーボード1704fを含む。本発明の発光装置を表示部1703fとして用いたパーソナルコンピュータを作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量のパーソナルコンピュータを実現できる。特に、ノートパソコンのように持ち歩く用途が必要な場合、電池の消費量や軽さの点で大きなメリットとなる。

【0145】

なお、上記電気器具はインターネットなどの電子通信回線や電波などの無線通信を通じて配信される情報を表示することが多くなってきており、特に動画情報を表示する機会が増えている。有機発光素子の応答速度は非常に速く、そのような動画表示に好適である。

【0146】

次に、図18(a)は携帯電話であり、本体1801a、音声出力部1802a、音声入力部1803a、表示部1804a、操作スイッチ1805a、アンテナ1806aを含む。本発明の発光装置を表示部1804aとして用いた携帯電話を作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量の携帯電話を実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも楽になる上にコンパクトな本体にできる。

【0147】

図18(b)は音響機器（具体的には車載用オーディオ）であり、本体1801b、表示部1802b、操作スイッチ1803b、1804bを含む。本発明の発光装置を表示部1802bとして用いた音響機器を作製することにより、消費電力が少なく、軽量の音響機器を実現できる。また、本実施例では車載用オーディオを例として示すが、家庭用オーディオに用いても良い。

【0148】

なお、図17～図18で示したような電気器具において、さらに光センサを内蔵させ、使用環境の明るさを検知する手段を設けることで、使用環境の明るさに応じて発光輝度を変調させるような機能を持たせることは有効である。使用者は、使用環境の明るさに比べてコントラスト比で100～150の明るさを確保できれば

、問題なく画像もしくは文字情報を認識できる。すなわち、使用環境が明るい場合は画像の輝度を上げて見やすくし、使用環境が暗い場合は画像の輝度を抑えて消費電力を抑えるといったことが可能となる。

## 【0149】

また、本発明の発光装置を光源として用いた様々な電気器具も、低消費電力での動作や薄型軽量化が可能であるため、非常に有用と言える。代表的には、液晶表示装置のバックライトもしくはフロントライトといった光源、または照明機器の光源として本発明の発光装置を含む電気器具は、低消費電力の実現や薄型軽量化が可能である。

## 【0150】

したがって、本実施例に示した図17～図18の電気器具の表示部を、全て液晶ディスプレイにする場合においても、その液晶ディスプレイのバックライトもしくはフロントライトとして本発明の発光装置を用いた電気器具を作製することにより、消費電力が少なく、薄くて軽量の電気器具が達成できる。

## 【0151】

## 【発明の効果】

本発明を実施することで、消費電力が少ない上に、寿命も優れた発光装置を得ることができる。さらに、そのような発光装置を光源もしくは表示部に用いることで、明るく消費電力が少ない上に、長保ちする電気器具を得ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】正孔注入層の役割を示す図。

【図2】濃度勾配を示す図。

【図3】濃度勾配を示す図。

【図4】濃度勾配を示す図。

【図5】有機発光素子の構造を示す図。

【図6】有機発光素子の構造を示す図。

【図7】有機発光素子の構造を示す図。

【図8】有機発光素子の構造を示す図。

【図 9】有機発光素子の構造を示す図。

【図 1 0】有機発光素子の構造を示す図。

【図 1 1】蒸着装置を示す図。

【図 1 2】発光装置の断面構造を示す図。

【図 1 3】発光装置の上面構造および断面構造を示す図。

【図 1 4】発光装置の上面構造および断面構造を示す図。

【図 1 5】発光装置の構成を示す図。

【図 1 6】発光装置の構成を示す図。

【図 1 7】電気器具の具体例を示す図。

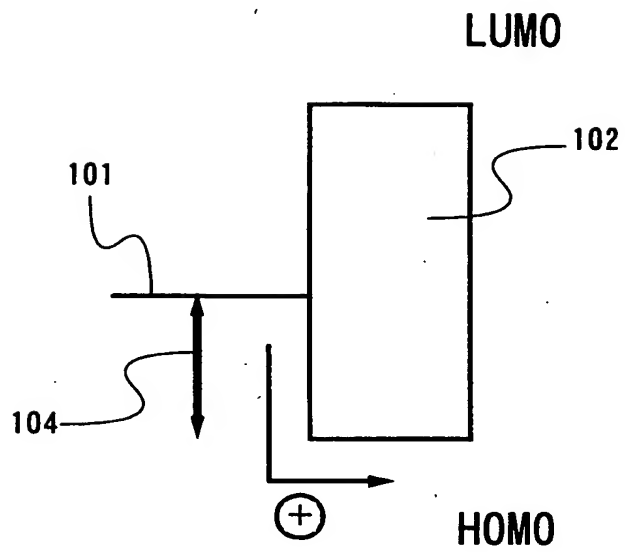
【図 1 8】電気器具の具体例を示す図。

【図 1 9】エネルギーバンドダイアグラムを示す図。

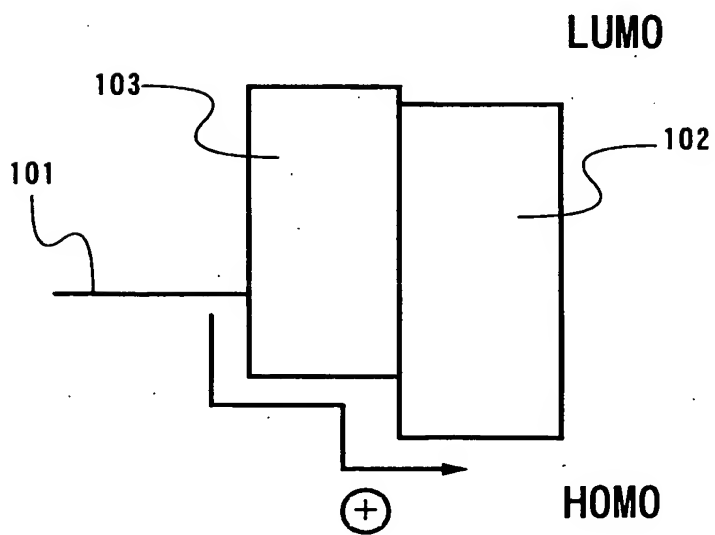
【図 2 0】エネルギーバンドダイアグラムを示す図。

【書類名】 図面

【図 1】



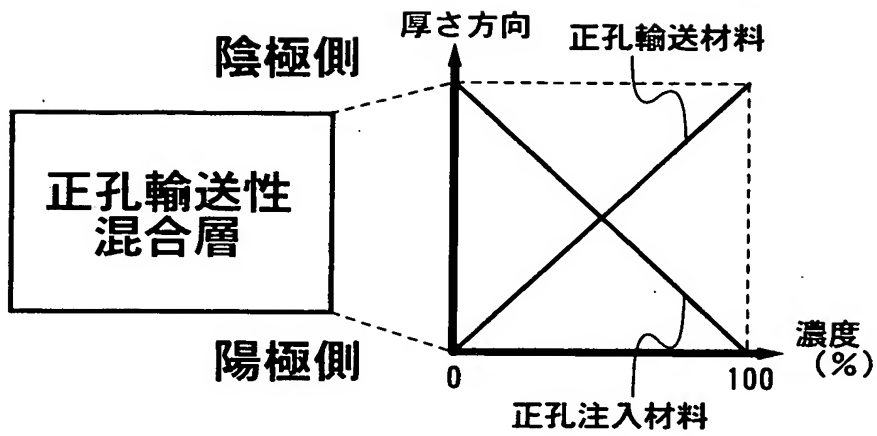
(a)



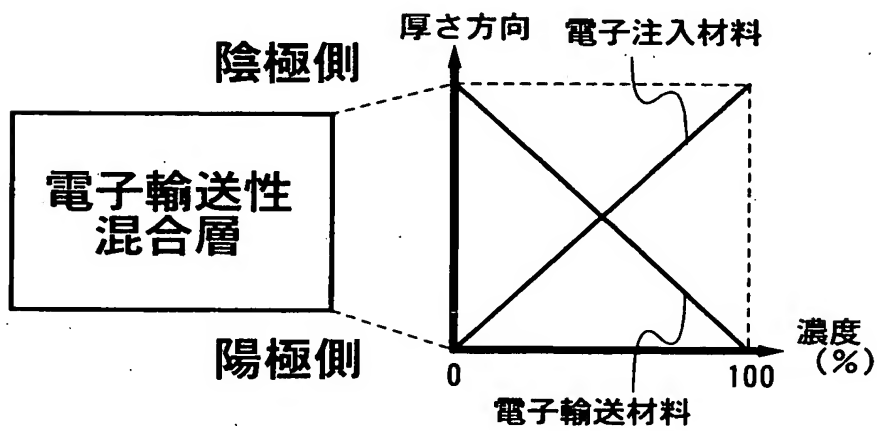
(b)



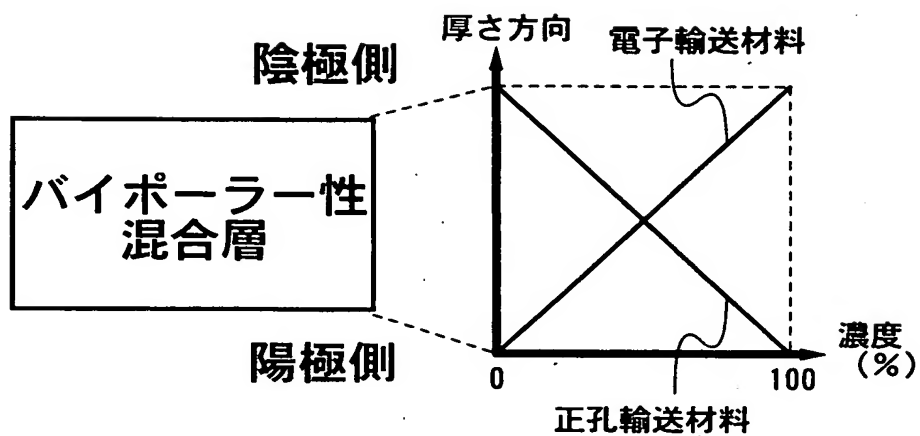
【図 2】



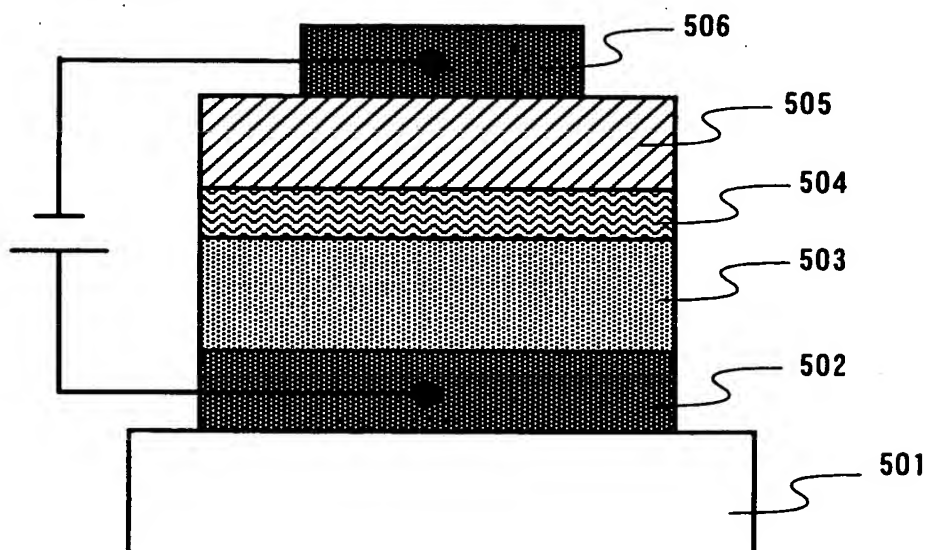
【図 3】



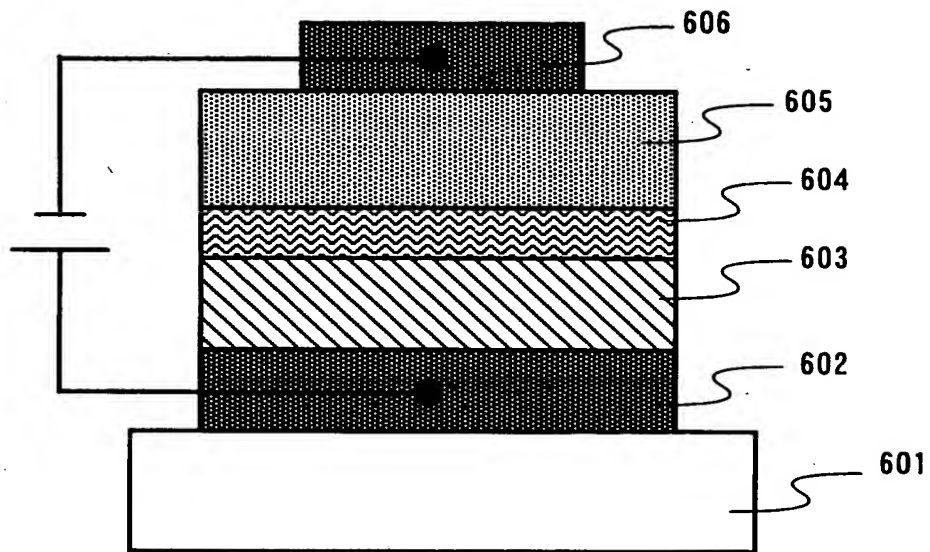
【図 4】



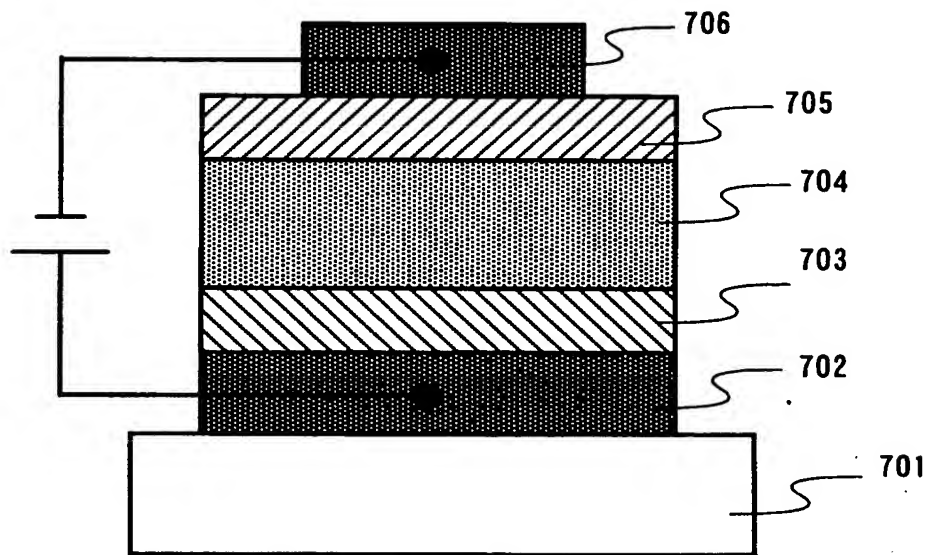
【図 5】



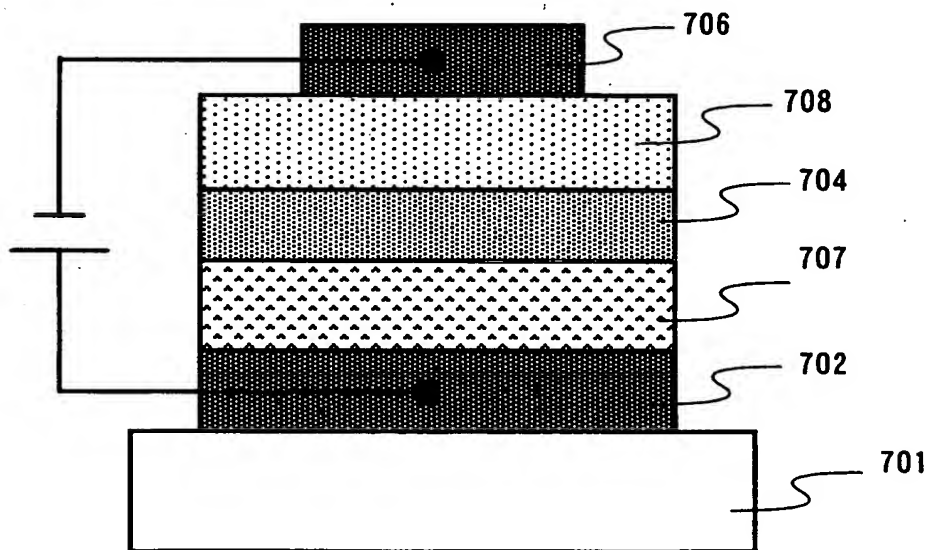
【図 6】



【図 7】

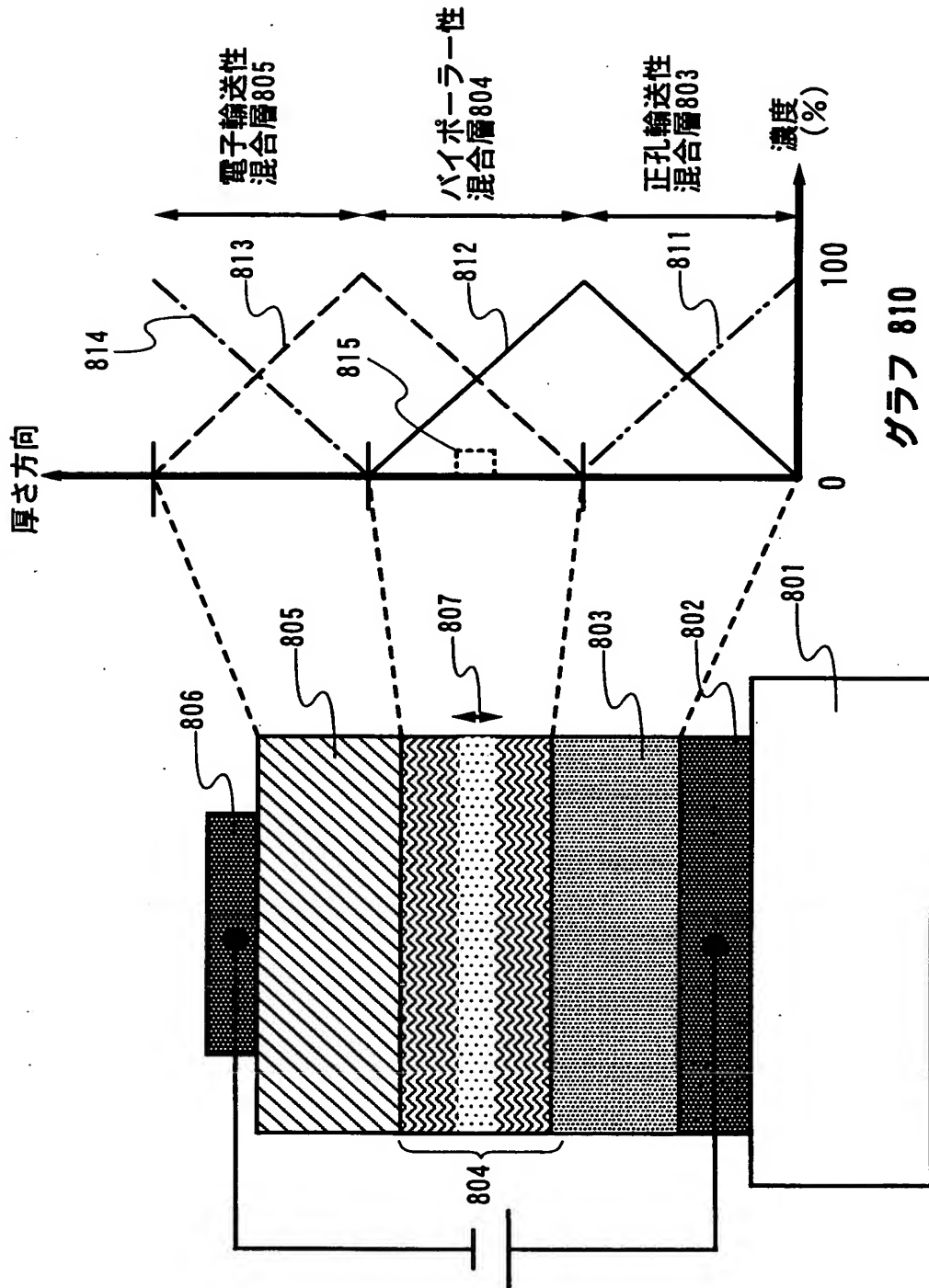


(a)

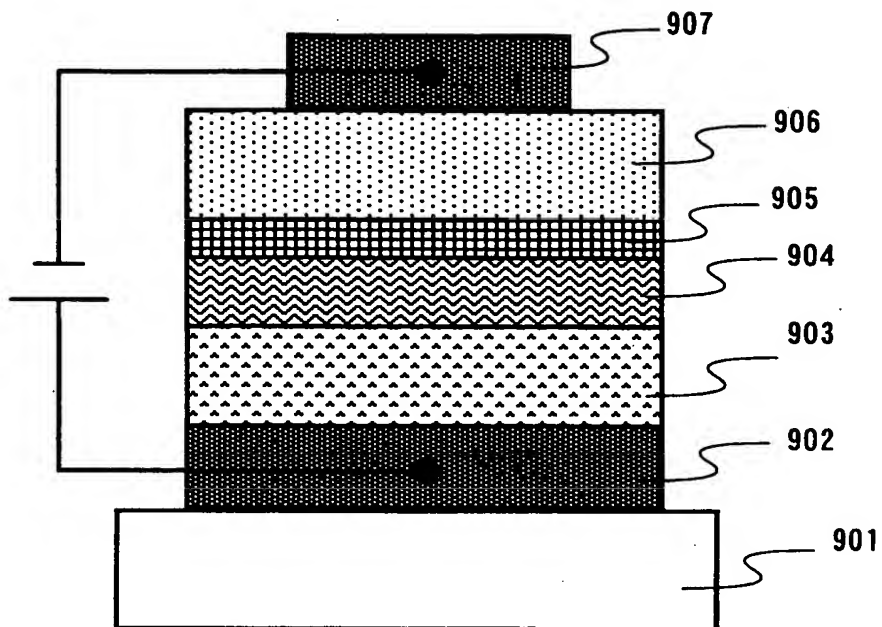


(b)

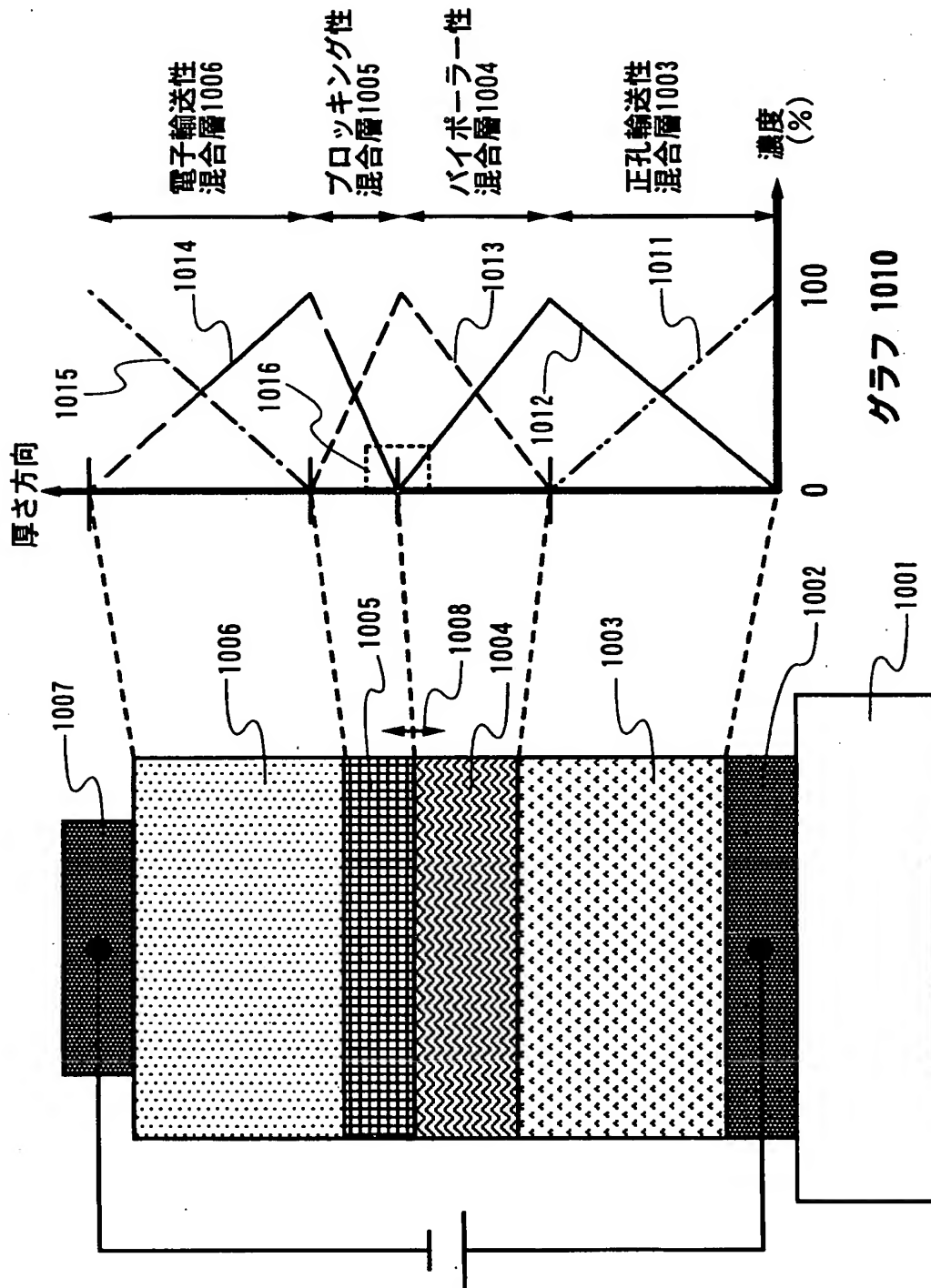
【図 8】



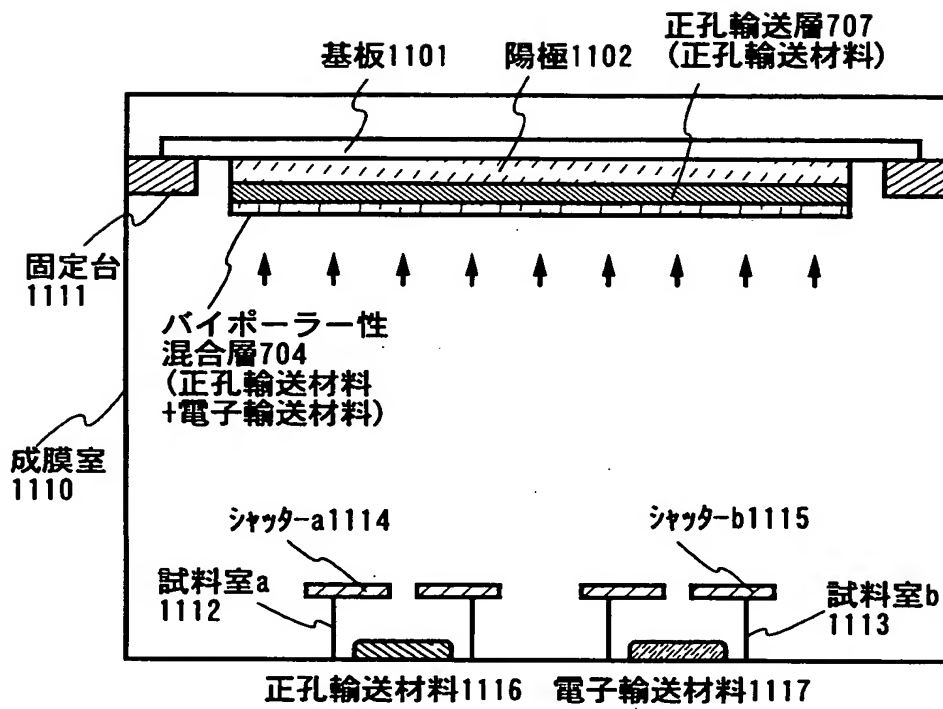
【図 9】



【図 10】

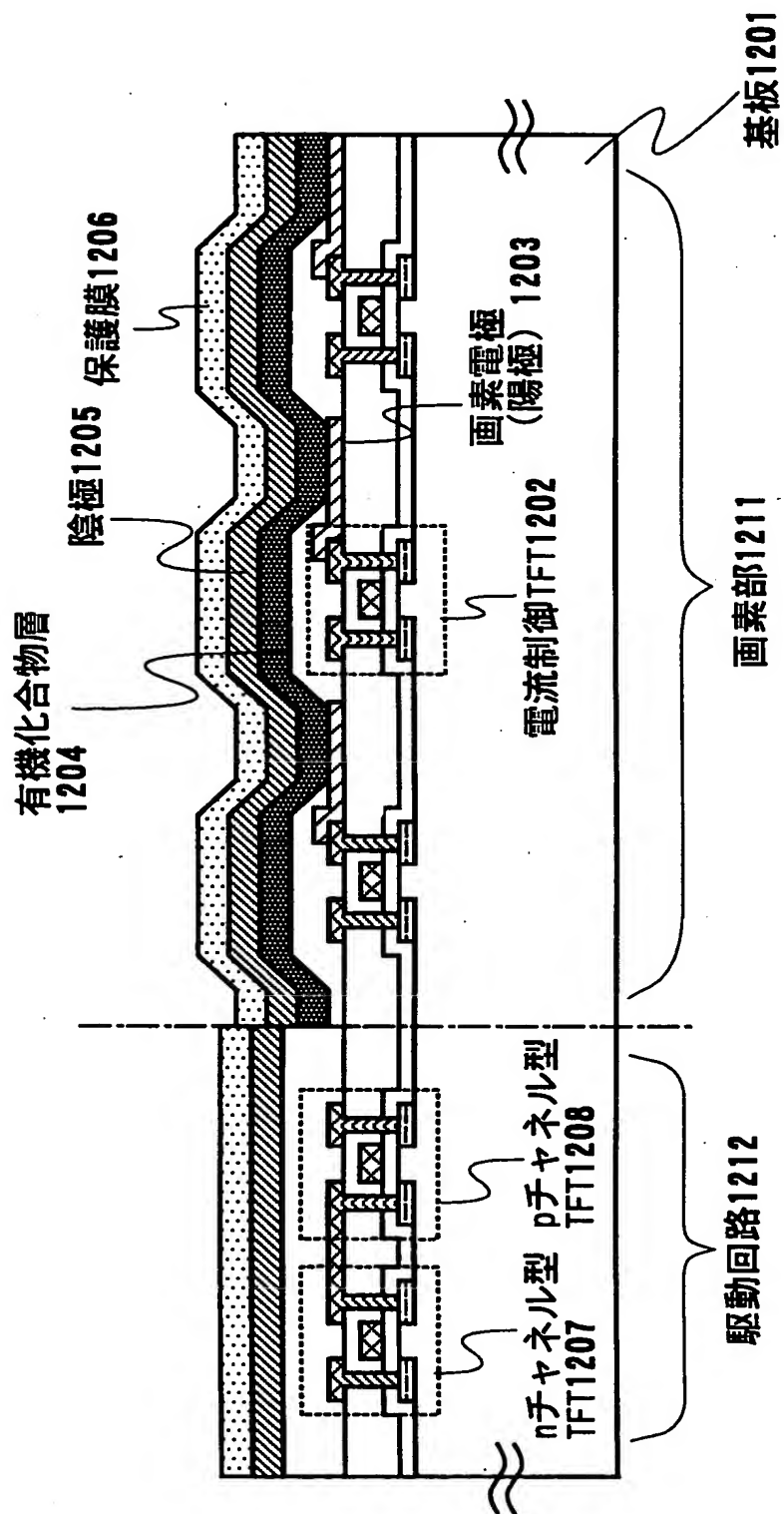


【図 11】

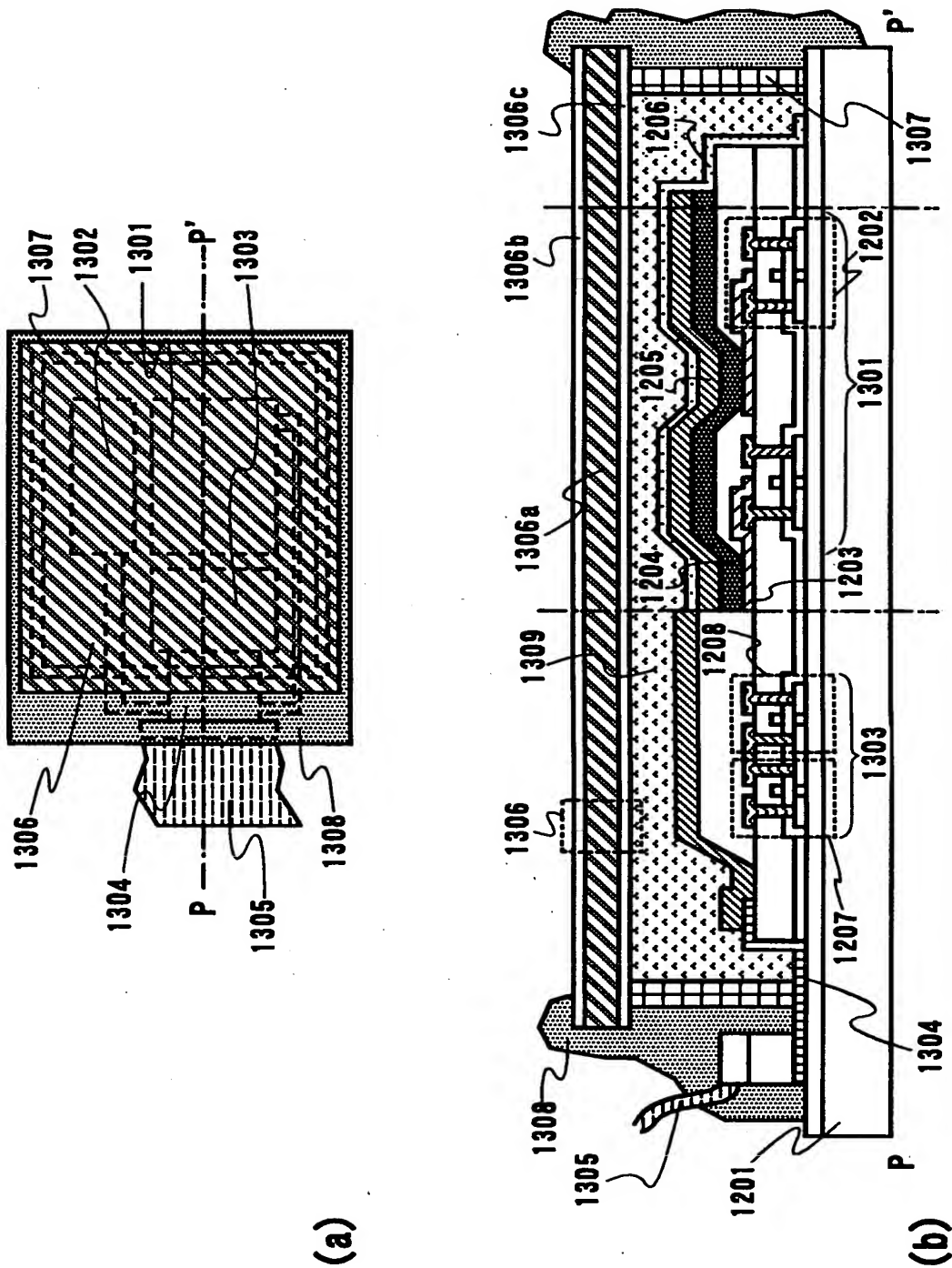




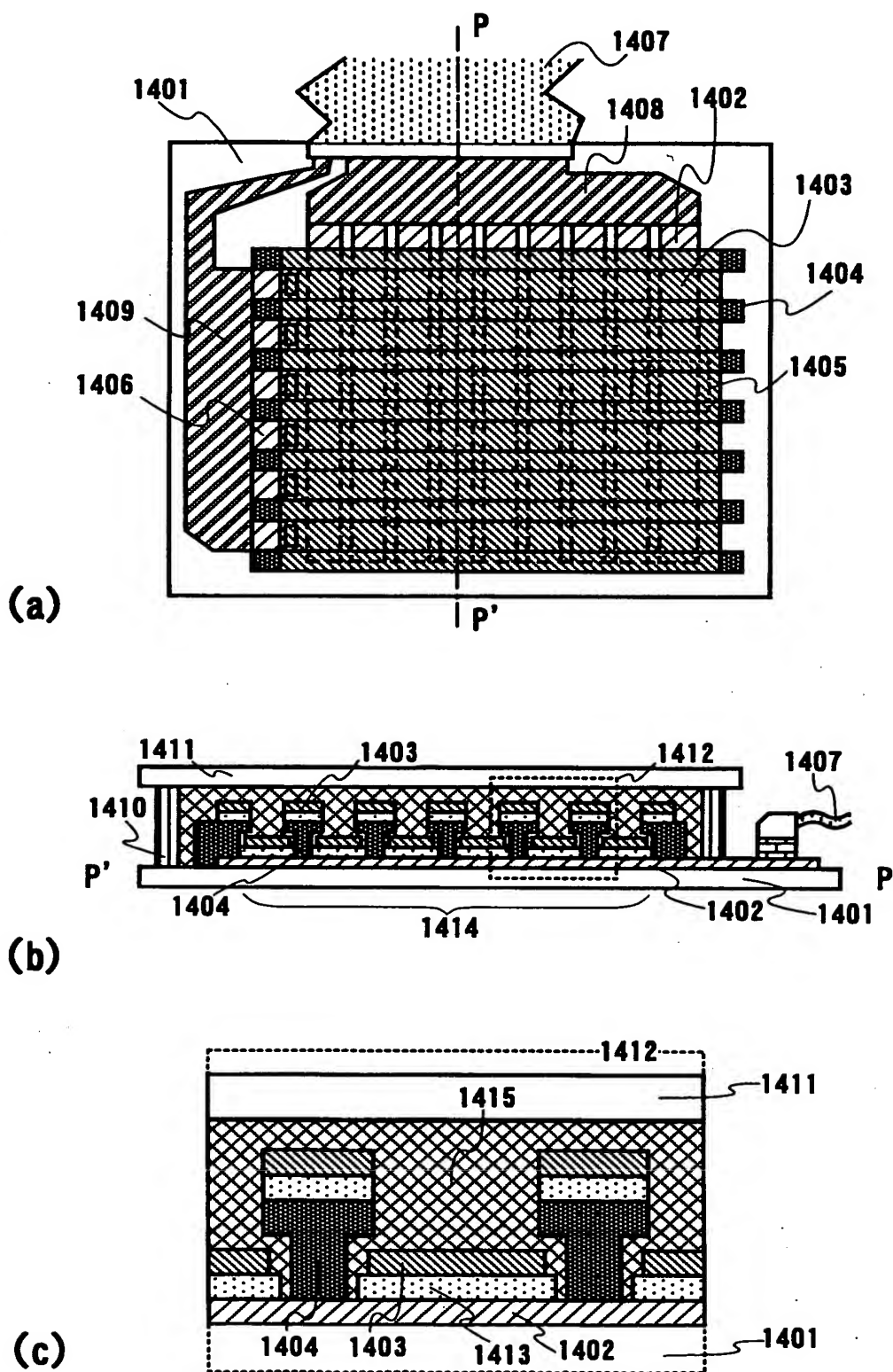
【図 1 2】



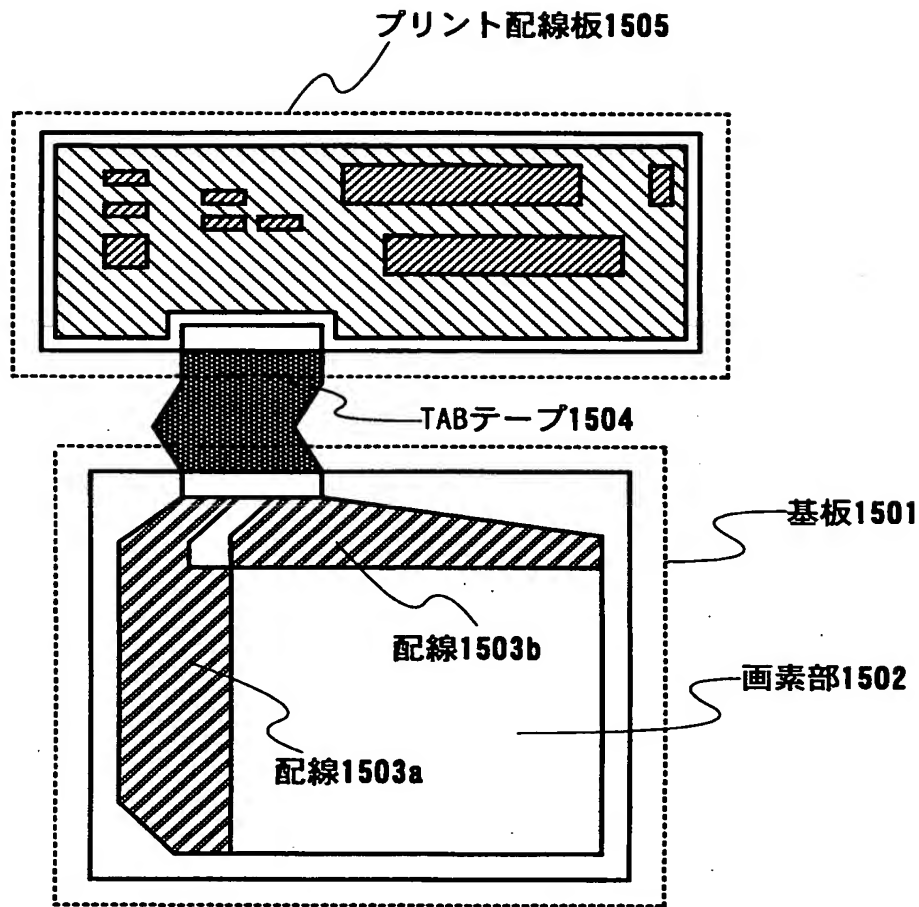
【図 13】



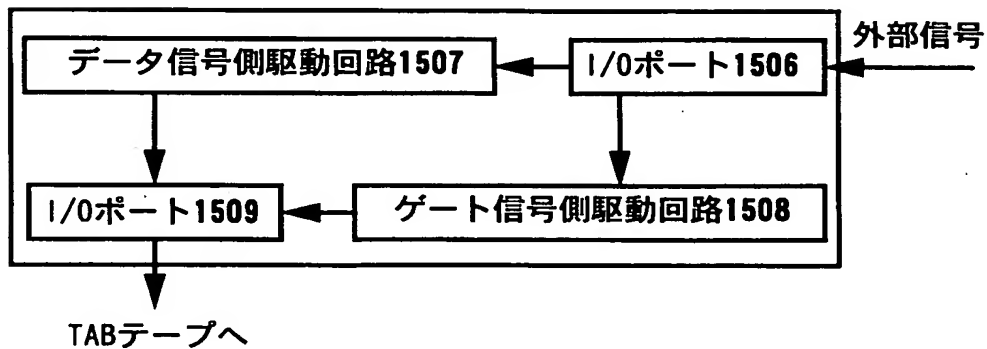
【図 1 4】



【図15】

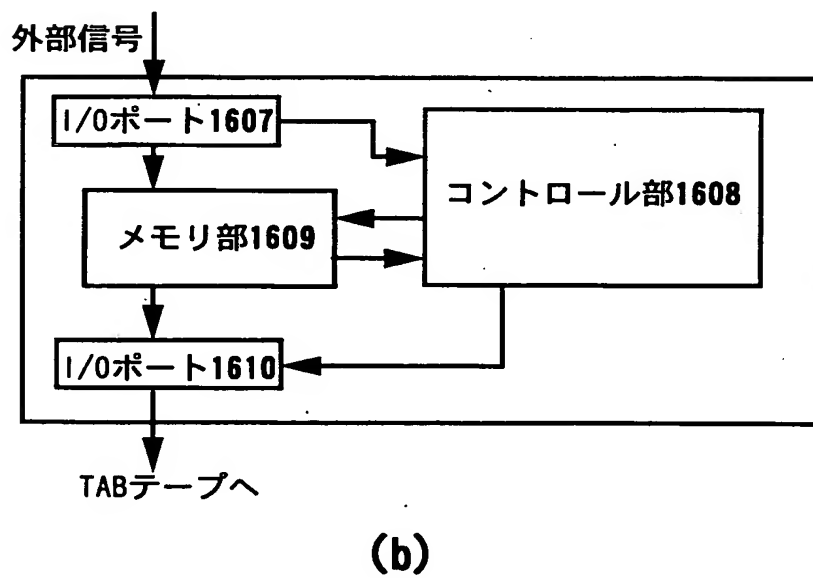
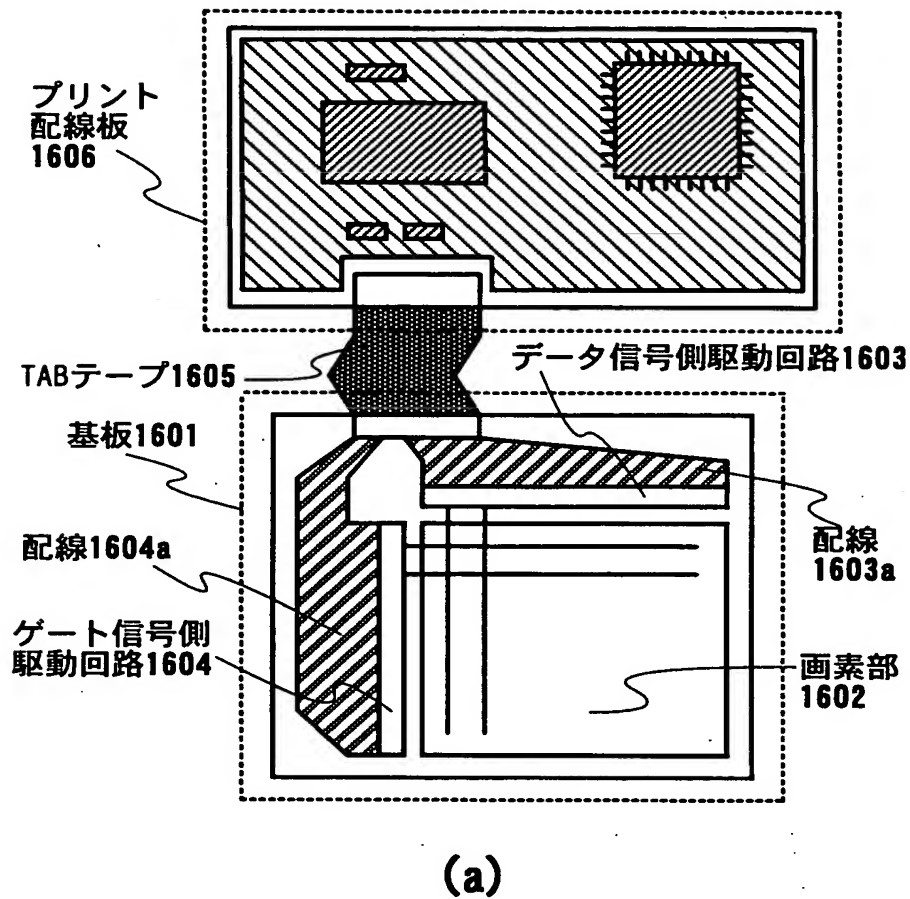


(a)

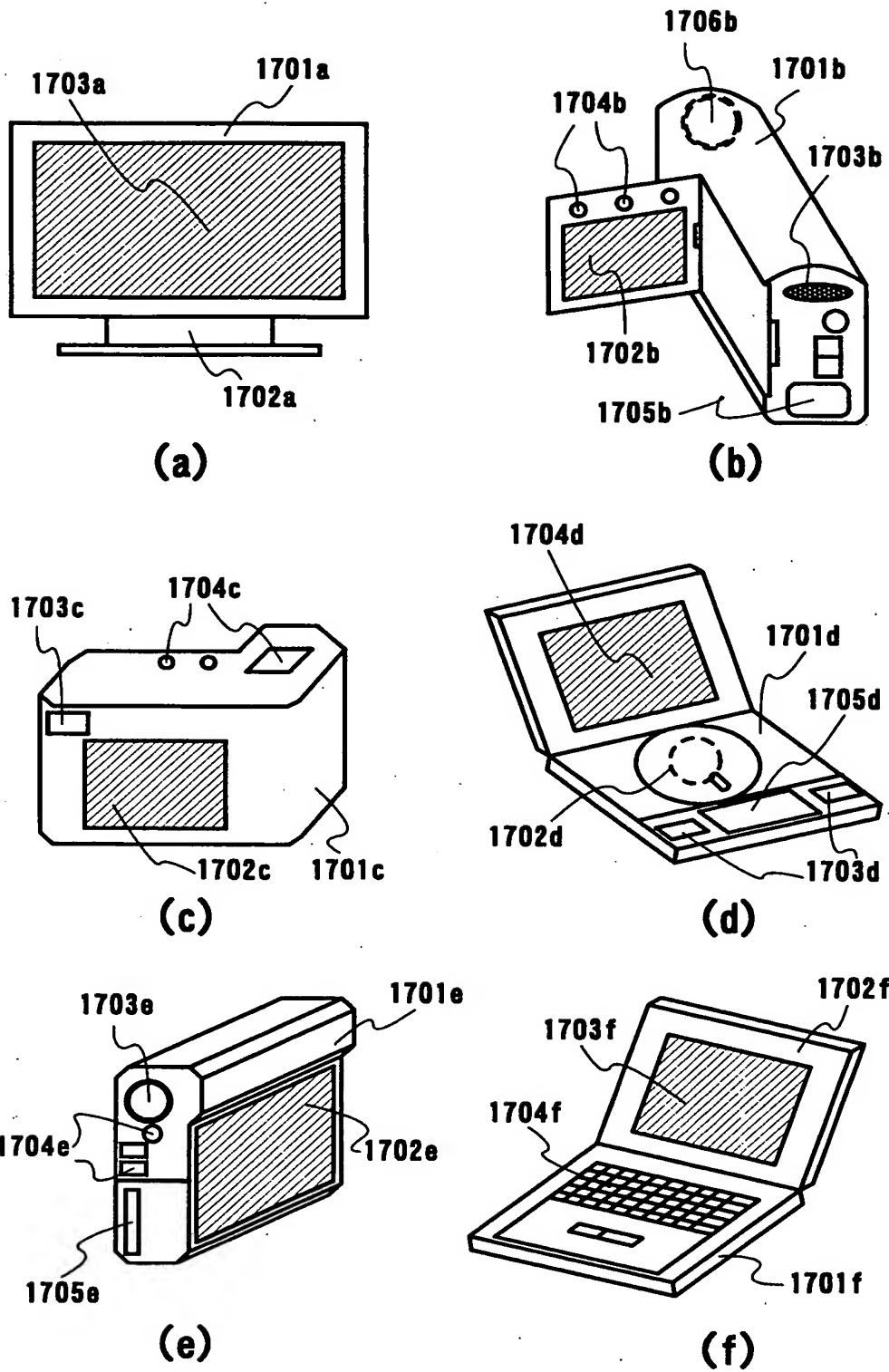


(b)

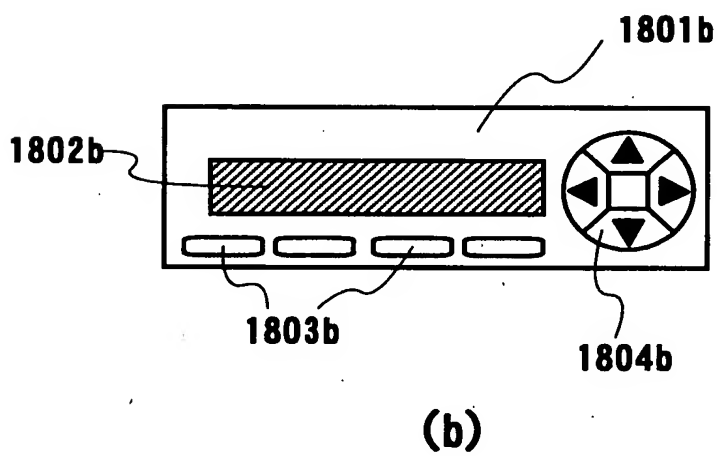
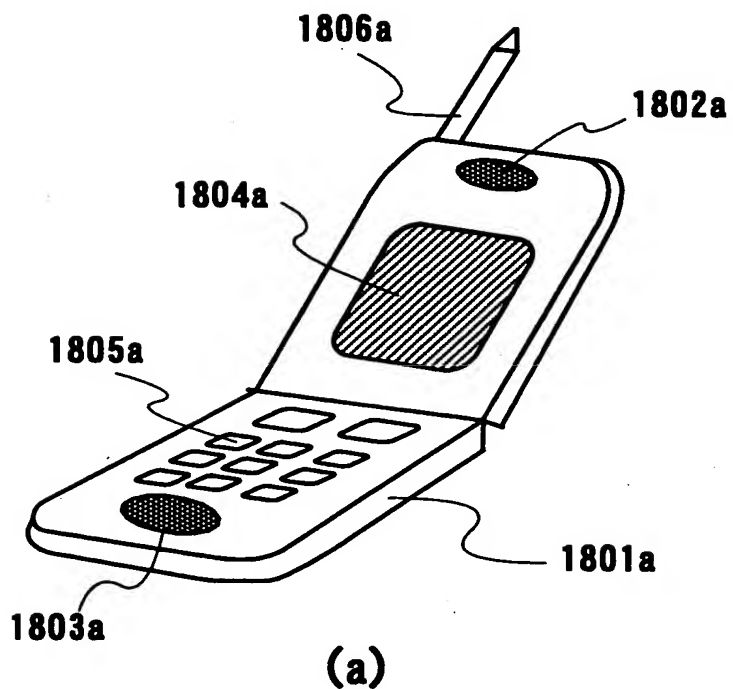
【図 1 6】



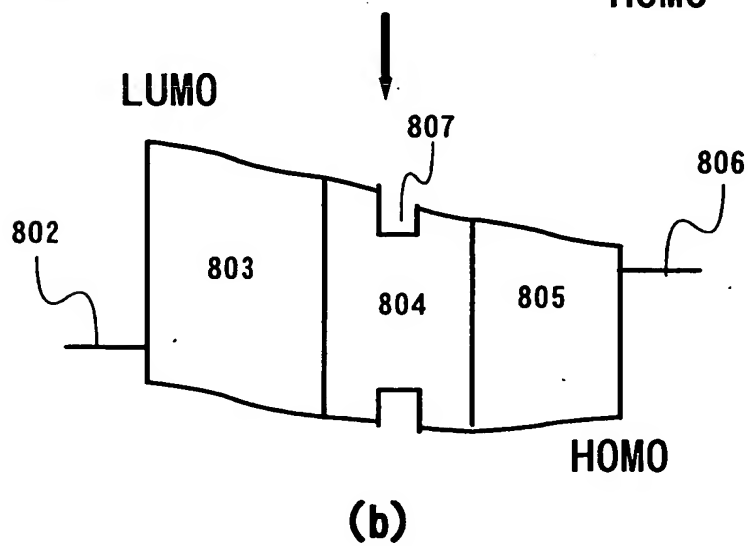
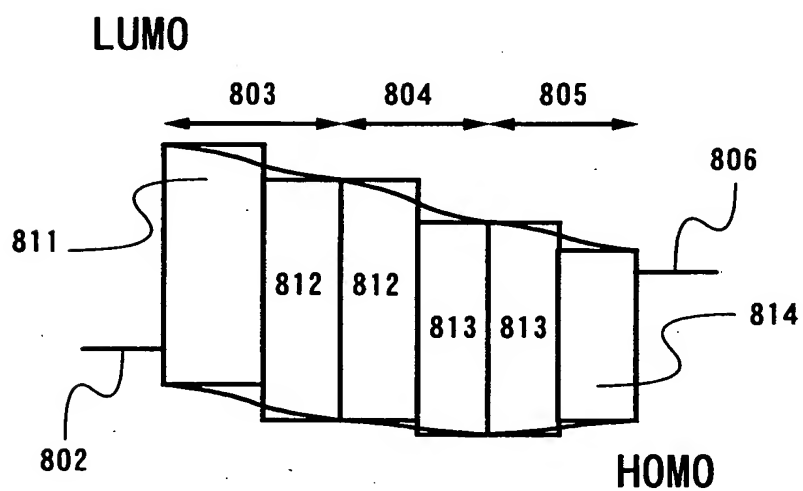
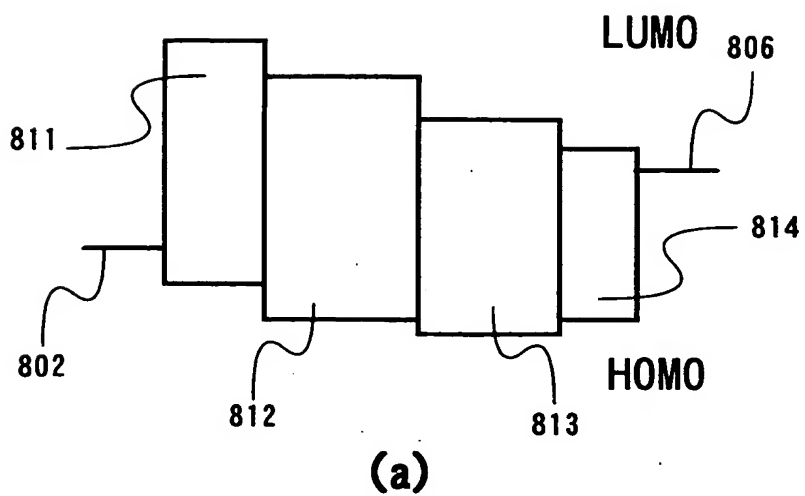
【図 17】



【図 1 8】

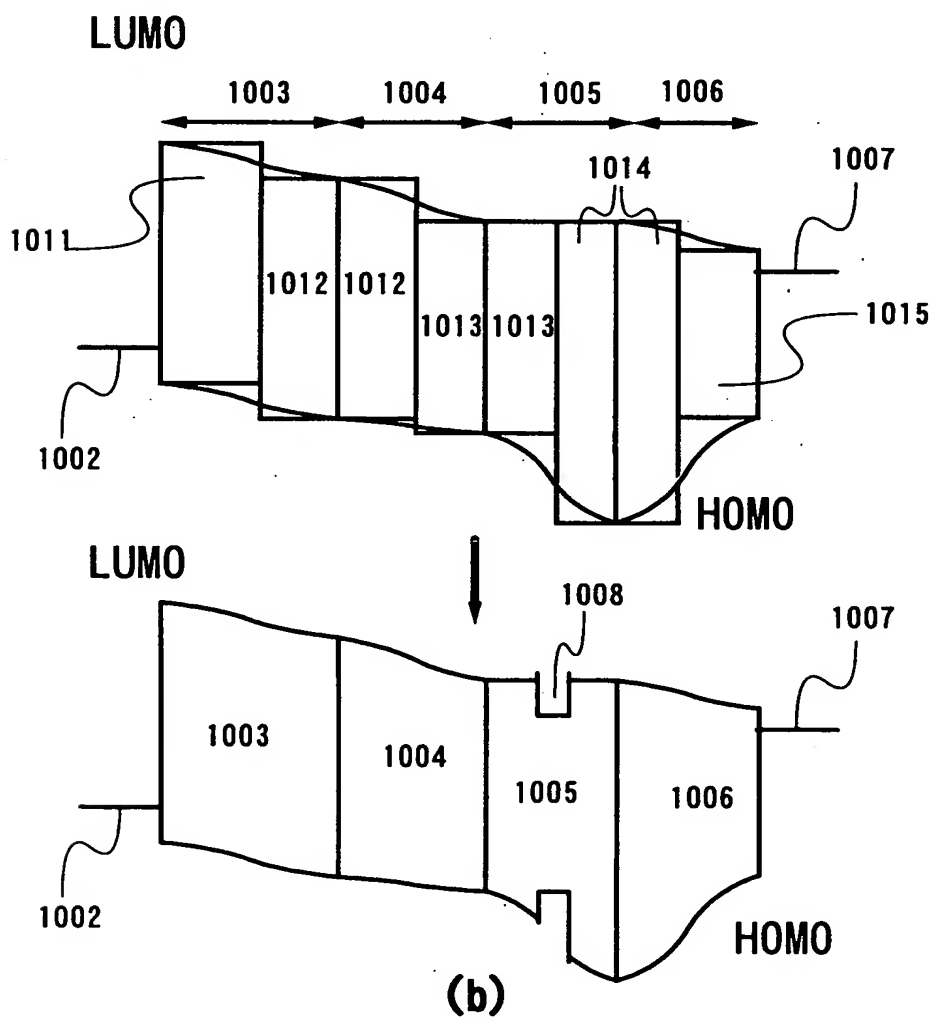
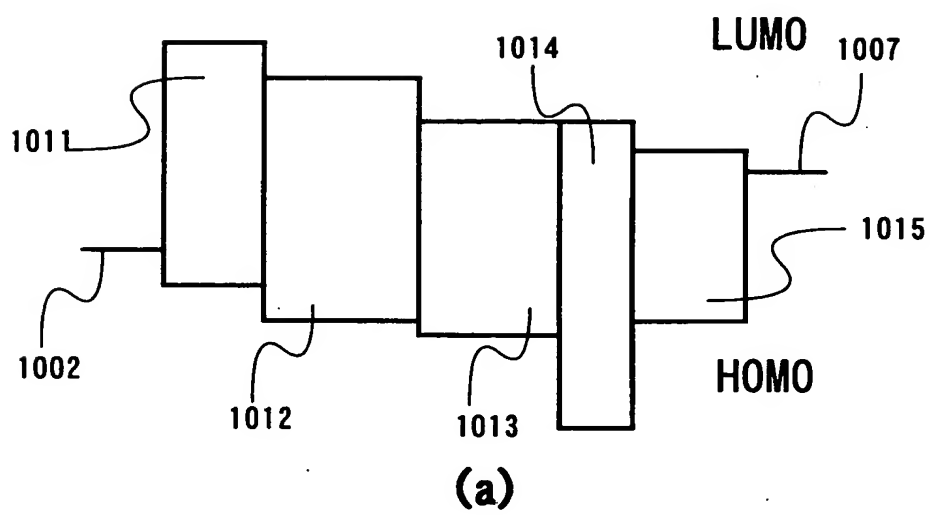


【図 1 9】





【図 2 0】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低消費電力で、寿命の長い発光装置および電気器具を提供する。

【解決手段】 正孔注入材料811および正孔輸送材料812からなる正孔輸送性混合層803、あるいは、正孔輸送材料812および電子輸送材料813からなるバイポーラ性混合層804、あるいは、電子輸送材料813および電子注入材料814からなる電子輸送性混合層805、を適用し、さらにはグラフ810のような濃度勾配を形成することによって、有機発光素子における層間のキャリア注入性を高める。この手法により、消費電力が低く寿命の長い有機発光素子を提供し、前記有機発光素子を用いて発光装置および電気器具を作製する。

【選択図】 図 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000153878]

1. 変更年月日	1990年 8月17日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県厚木市長谷398番地
氏 名	株式会社半導体エネルギー研究所